HAL
open science

Spectroscopie à haute résolution de H2+ : production et refroidissement sympathique d'ions piégés.

Thomas Louvradoux

▶ **To cite this version:**

Thomas Louvradoux. Spectroscopie à haute résolution de H2+ : production et refroidissement sympathique d'ions piégés.. Physique [physics]. Université Paris Cité, 2019. Français. NNT : 2019UNIP7168 . tel-03142917

HAL Id: tel-03142917

https://theses.hal.science/tel-03142917

Submitted on 16 Feb 2021

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.

Thèse de doctorat de l'Université de Paris

Ecole doctorale n°564 : Physique en Ile-de-France

Laboratoire Kastler Brossel

Sujet de la thèse :

Spectroscopie à haute résolution de H_2^+ : Production et refroidissement sympathique d'ions piégés

présentée par

Thomas LOUVRADOUX

Thèse de doctorat de Physique

dirigée par

Laurent HILICO

présentée et soutenue publiquement le 16 décembre 2019

devant un jury composé de :

Mme	Martina KNOOP	Directrice de recherche, PIIM, Université de Marseille	Rapporteuse
M.	Xavier URBAIN	Professeur, IMCN, Université Catholique de Louvain	Rapporteur
Mme	Anne AMY-KLEIN	Professeur, LPL, Université Paris 13	Examinatrice
M.	Luca GUIDONI	Chargé de recherche, MPQ ,Université de Paris	Examinateur
M.	Laurent HILICO	Professeur, LKB, Université Evry Val-d'Essonne	Directeur de thèse

Remerciements

Ce travail a été effectué au laboratoire Kastler Brossel de l'université Pierre et Marie Curie. Je remercie Antoine Heindmann directeur du laboratoire pour m'avoir accueilli et pour les excellentes conditions de travail dont j'ai pu bénéficier.

Je te tiens à remercier Martina Knoop, Xavier Urbain, Anne Amy-Klein, Luca Guidoni et Laurent Hilico qui ont accepté de participer au jury.

Tout au long de mon travail de thèse, j'ai été suivi et encadré par Laurent Hilico, mon directeur de thèse. Je tiens à le remercier pour son aide, son soutien et pour la confiance qu'il m'a accordée. Je le remercie également pour le temps et l'énergie qu'il a donné à la correction de ce manuscrit. Je tiens aussi à remercier les autres membres du groupe : Jean-Philippe Karr et Albane Douillet pour leurs aides théoriques et expérimentales. Finalement je remercie l'ensemble de l'équipe Ions Piégés pour la qualité de l'accueil qu'ils m'ont offert et pour les discussions fructueuses que nous avons eues sur de nombreux sujets, liés au domaine de la physique ou non.

Au cours de mes trois années de thèse, j'ai été amené à travailler avec Johannes Heinrich, Nicolas Silitoe, Malcolm Simpson, Mohammad Haidar et Julian Schmidt. Je tiens à les remercier pour leur aide et pour leur implication dans notre expérience. En particulier, je remercie Johannes et Nicolas qui ont commencé leur thèse deux ans avant moi et qui ont construit l'édifice de cette expérience qui m'a permis d'aboutir aux différents résultats que je présente dans ce manuscrit et Julian qui a intégré notre équipe il y a maintenant un an et qui a permis d'améliorer et de faire avancer l'expérience.

Enfin, je tiens à remercier le personnel technique : Loic Garcia, Brigitte Delamour, Sebastien Colinot, Gaël Coupin, Carounagarane Doré, Jean-Michel Isac qui ont toujours fait preuve d'une grande disponibilité. Je remercie également le personnel administratif : Nora Aissous, Laetitia Morel, Romain Rybka, Thierry Tardieu et Valérie Revelut qui m'ont simplifié l'ensemble des tâches administratives.

Table des Matières

1 Introduction **1**
1.1 Présentation du travail de thèse . . . 1
1.1.1 Motivations . . . 1
1.1.2 État de l'art . . . 3
1.1.3 La spectroscopie de H_2^+ : dispositif expérimental . . . 4
1.1.4 Organisation du manuscrit . . . 7
1.2 L'ion H_2^+ . . . 7
1.2.1 Structure hyperfine . . . 8
1.2.2 Spectre de transition à deux photons . . . 10
1.2.3 Effets systématiques . . . 13
1.2.4 Conclusion . . . 15
1.3 Projet GBAR . . . 15

2 Piégeage d'ions **17**
2.1 Piège radio-fréquence . . . 18
2.1.1 Confinement d'une particule chargée . . . 18
2.1.2 Le piège hyperbolique . . . 18
2.1.3 Le piège linéaire . . . 19
2.1.4 Piège de Paul linéaire . . . 20
2.1.5 Fonctionnement du piège . . . 26
2.2 L'enceinte à vide principale . . . 27
2.3 Création d'ions Be^+ . . . 29
2.3.1 Four à béryllium . . . 30
2.3.2 Canon à électrons . . . 30
2.3.3 Photo-ionisation du béryllium . . . 31
2.4 Conclusion . . . 36

3 Création d'ions H_2^+ **37**
3.1 Source d'hydrogène moléculaire . . . 38
3.2 Photo-ionisation de H_2 . . . 39
3.2.1 La méthode REMPI . . . 39
3.2.2 Résultats . . . 40

4 Photo-dissociation de H_2^+ **47**
4.1 Modèle de la dissociation d'ions H_2^+ à 213 nm . . . 49
4.2 Résultats . . . 52

5 Refroidissement d'ions piégés **57**

5.1 Refroidissement Doppler . . . 58
5.1.1 Force de pression de radiation . . . 58
5.1.2 Refroidissement Doppler d'ions piégés . . . 60
5.1.3 L'ion béryllium . . . 63
5.2 Sources Lasers . . . 64
5.2.1 Lasers à fibres . . . 65
5.2.2 Diode laser . . . 67
5.3 Cavité de doublage . . . 69
5.3.1 Doublage de fréquence : optique non linéaire . . . 70
5.3.2 Cavité de surtension . . . 77
5.3.3 Résultats . . . 86

6 Cristaux de Coulomb 89
6.1 Ions refroidis . . . 90
6.1.1 Cristaux de Coulomb . . . 90
6.1.2 Refroidissement sympathique . . . 91
6.2 Détection des ions . . . 92
6.2.1 L'imagerie . . . 92
6.2.2 L'excitation séculaire . . . 95
6.3 Procédure de création . . . 97
6.4 Nettoyage du nuage d'ions . . . 100
6.4.1 Nettoyage des ions lourds . . . 100
6.4.2 Nettoyage des ions légers . . . 101
6.5 Compensation du micromouvement . . . 102
6.6 Comptage d'ions . . . 105
6.6.1 Comptage des ions Be^+ . . . 105
6.6.2 Comptage des ions H_2^+ . . . 107

7 Spectroscopie à haute résolution 109
7.1 Source laser pour la spectroscopie . . . 109
7.1.1 Le laser à cascade quantique . . . 110
7.1.2 La référence de fréquence . . . 110
7.1.3 Asservissement du QCL sur le CO_2 . . . 111
7.2 Cavité de haute finesse pour la spectroscopie . . . 112
7.2.1 Conception de la cavité . . . 112
7.2.2 Calcul de l'intensité intra-cavité . . . 114
7.2.3 Asservissement de la cavité . . . 116
7.2.4 Probabilité de transition . . . 118

8 Conclusion 121

Annexes 123

A Matrices ABCD dioptre quelconque 125
A.1 Matrices ABCD : optique géométrique . . . 125
A.2 Loi de Snell-Descartes vectorielle . . . 126
A.3 Matrices ABCD : traversée d'un dioptre . . . 127
A.3.1 Plan tangentiel - M^{tan} . . . 128
A.3.2 Plan sagittal - M^{sag} . . . 128

A.3.3 Cas particulier : incidence de Brewster 130

B Filtre à -10 dB/dec **131**

Références **133**

Chapitre 1

Introduction

1.1 Présentation du travail de thèse

1.1.1 Motivations

Cette thèse a été réalisée au sein de l'équipe "Ions piégés" au laboratoire Kastler Brossel (LKB) dont l'objectif est de réaliser la spectroscopie à haute résolution de l'ion moléculaire H_2^+. La motivation principale de ces travaux est de contribuer à la détermination des constantes fondamentales, en particulier $\mu_{pe} = m_p/m_e$, le rapport de la masse du proton sur la masse de l'électron. Cette constante est actuellement déterminée à partir de mesures indépendantes de la masse du proton [1] et de la masse de l'électron [2] effectuées dans des pièges de Penning. La mesure de la masse de l'électron consiste en la combinaison d'une mesure très précise du moment magnétique d'un électron unique lié à un noyau de carbone avec des calculs de pointe d'électrodynamique quantique (QED). La mesure de la masse du proton est réalisée en mesurant le rapport de la fréquence cyclotron d'un ion $^{12}C^{6+}$ et de celle d'un proton. Très récemment la précision sur la mesure de la masse du proton a été améliorée avec une incertitude relative de $3{,}2.10^{-11}$ [1] diminuant ainsi l'incertitude sur le rapport de masse à $4{,}3.10^{-11}$. Cependant, cette mesure présente un désaccord d'environ 3σ par rapport à la mesure précédente, dont l'origine est pour l'heure inexpliquée. Cela a conduit le Committee on Data for Science and Technology (CODATA) à élargir les barres d'erreurs pour rendre les mesures compatibles. La valeur recommandée selon l'ajustement du CODATA 2018 est $m_p/m_e = 1836{,}152\,673\,43(11)$ [3, 4] avec une incertitude relative de $6{,}0.10^{-11}$.

En 1976, W.H. Wing [5] propose d'utiliser la spectroscopie des niveaux ro-vibrationnels de l'ion moléculaire HD^+, combinée à des prédictions théoriques précises, afin de déterminer directement le rapport μ_{pe}. L'efficacité de cette méthode repose sur trois points :

- les fréquences des transitions ro-vibrationnelles ont une forte sensibilité à la valeur μ_{pe},

- HD^+ étant une molécule simple, les calculs des fréquences de transition sont d'une très grande précision,
- expérimentalement, c'est une mesure de fréquence optique sur une raie étroite, qui est à l'heure actuelle le type de mesure le plus précis.

En 2001 L. Hilico [6] a montré la faisabilité de la spectroscopie à deux photons sans effet Doppler dans H_2^+ qui permet une détermination spectroscopique encore plus directe du rapport μ_{pe} car dans ce cas, les seules particules entrant en jeu sont deux protons et un électron. En effet, dans HD^+ les fréquences de transition dépendent essentiellement du rapport m_r/m_e où m_r est la masse réduite des noyaux ; elles font donc intervenir une combinaison des deux rapports de masse m_p/m_e et m_d/m_e. La mesure de l'un de ces rapports par une autre expérience est donc nécessaire pour en déduire l'autre par spectroscopie de HD^+. Plus généralement, les transitions de HD^+ et H_2^+, ayant des dépendances différentes en fonction des constantes fondamentales, peuvent apporter des informations complémentaires. En 2016 Karr et al. [7] montrent qu'une combinaison de mesures, avec des précisions de l'ordre de 10^{-12}, sur différentes transitions dans H, D, H_2^+ et HD^+ pourrait permettre une détermination compétitive des constantes suivantes : R_∞, μ_{pe}, μ_{dp}, r_p et r_d, où r_p et r_d sont respectivement les rayons du proton et du deutéron. Enfin, des mesures de ultra-haute précision (10^{-16} ou mieux) sur H_2^+ ou HD^+ permettraient d'améliorer la précision des tests actuels de variation des constantes fondamentales [8].

Les énergies des niveaux ro-vibrationnels de l'ion hydrogène moléculaire peuvent être écrites sous la forme suivante [7] :

$$E = hcR_\infty \left[E_{nr}\left(\mu_n\right) + A_{QED}(\alpha) + \sum_n A_n^{fs} \left(r_n/a_0\right)^2 \right], \tag{1.1}$$

où R_∞ est la constante de Rydberg, α est la constante de structure fine et a_0 le rayon de Bohr. La contribution principale à E est le terme non-relativiste $E_{nr}\left(\mu_n\right)$ qui dépend de la constante fondamentale $\mu_n = \mu_{pe}$ dans H_2^+ et de $\mu_n = \{\mu_{pe},\mu_{dp}\}$ dans HD^+. Le deuxième terme correspond aux corrections relativistes et de QED. Le dernier terme est la correction due à la taille finie du noyau. Dans H_2^+ ces énergies dépendent principalement de trois constantes fondamentales : R_∞, μ_{pe} et r_p. Dans l'ajustement du CODATA 2018, la constante de Rydberg et le rayon du proton sont donnés avec des incertitudes respectives de $1{,}9.10^{-12}$ et $2{,}2.10^{-3}$. Cependant, leurs valeurs font encore débat, en raison du désaccord entre les différentes méthodes de mesure du rayon du proton ("proton radius puzzle"). La dépendance de ces fréquences de transition avec le rayon du proton r_p est très faible [7]. La dépendance par rapport à μ_{pe} est très grande car, dans l'approximation harmonique, $E_{nr}(\mu_{pe}) \propto (\mu_{pe})^{1/2}$. Ainsi une mesure précise de la fréquence de transition donne accès au rapport μ_{pe} avec une incertitude relative seulement deux fois plus importante à condition que les calculs théoriques soient suffisamment précis pour que l'incertitude des calculs théoriques soit limitée par la connaissance de μ_{pe}.

Le tableau 1.1 donne les derniers résultats théoriques [9] de la fréquence de la transition $(v=0,L=2) \rightarrow (v=1,L=2)$ dans H_2^+ en kHz. La première ligne correspond au terme non relativiste de l'équation 1.1. Les termes suivants correspondent

ν_{nr}	65 412 414 314.5
ν_{α^2}	1 077 263.8
ν_{α^3}	−274 145.4
ν_{α^4}	−1 935.5(1)
ν_{α^5}	120.8(1)
ν_{α^6}	2.3(5)
ν_{tot}	65 413 215 616.1(5)

Tableau 1.1: *Intervalle de fréquence* $(v=0,L=2) \rightarrow (v=1,L=2)$ *de l'ion moléculaire* H_2^+ *en kHz (la fréquence du laser pour la transition à deux photons s'en déduit en divisant par 2). La première ligne correspond au terme non relativiste de l'équation 1.1. Les termes suivants correspondent aux corrections relativistes et de QED [9].*

aux corrections relativistes et de QED. Ces résultats correspondent à une incertitude relative théorique sur la fréquence de transition de $7{,}6.10^{-12}$. Ainsi une unique mesure de cette fréquence de transition devrait permettre de déterminer le rapport de masse μ_{pe} avec une incertitude relative de $1{,}6.10^{-11}$ soit 3,8 fois meilleure que la valeur actuelle du CODATA.

1.1.2 État de l'art

Dans le domaine de la spectroscopie à très haute résolution, il existe 2 expériences sur l'ion HD^+ ayant déjà produit des résultats, mais aucune mesure n'a été réalisée jusqu'ici sur l'ion H_2^+. Cela provient des différences entre les spectres. En effet, l'ion H_2^+ étant une molécule diatomique homonucléaire, il ne possède pas de moment dipolaire électrique permanent, les transitions ro-vibrationnelles dipolaires électriques à un photon sont donc interdites. L'ion HD^+ quant à lui est une molécule diatomique hétéronucléaire, ses noyaux étant un proton et un deutéron. HD^+ possède un faible moment dipolaire électrique permanent, les transitions ro-vibrationnelles dipolaires électriques à un photon sont donc permises.

L'ion HD^+ :

Des transitions ro-vibrationnelles dans les ions HD^+ ont été observées pour la première fois par Wing et al. [5] dans l'infrarouge en 1976, avec la mesure de 7 transitions ro-vibrationnelles impliquant les états $v = 0-3, L = 0-3$ avec des incertitudes relatives de 10^{-6}. Dans les années 1980 et 1990, Carrington et al. ont mesuré et calculé plusieurs transitions dans HD^+ [10, 11, 12] avec des incertitudes relatives sur les mesures et sur les calculs de l'ordre de 10^{-7}. Plus récemment, en 2007, Koelemeij et al. ont mesuré la fréquence de la transition $v=0,L=2 \rightarrow v=4,L=3$ dans HD^+ à $1{,}39\,\mu$m avec une incertitude relative de 2.10^{-9} [13]. Cette amélioration de la précision expérimentale a été permise par l'avènement de techniques de refroidissement sympathique des ions moléculaires par des ions atomiques refroidis par laser. L'incertitude sur la mesure des transitions ro-vibrationnelles dans HD^+ a encore été réduite à $1{,}1.10^{-9}$ sur la transition $v=0,L=0 \rightarrow v=1,L=1$ par Bressel et al. en 2012 [14]. Néanmoins cette mesure diffère des prédictions théoriques

de 2,5σ. En 2016 Biesheuvel et al. [15, 16] ont mesuré la fréquence de transition $v = 0, L = 2 \rightarrow v = 8, L = 3$ avec une incertitude relative de $1{,}1.10^{-9}$, dans ce cas, en accord avec les prédictions théoriques. En 2018 Alighanbari et al. ont réalisé la spectroscopie sans effet Doppler dans le régime de Lamb-Dicke d'une transition purement rotationnelle à $\sim 1{,}3$ THz avec une incertitude relative de $3{,}8.10^{-10}$ [17]. Très récemment la transition à 2 photons sans effet Doppler $v=0, L=3 \rightarrow v=9, L=3$ a été observée par l'équipe de J. Koelemeij au laboratoire VU à Amsterdam avec une incertitude expérimentale de quelques 10^{-12}.

L'ion H_2^+ :

Dans les années 1960, Dehmelt et Jefferts ont observé des transitions entre plusieurs sous-niveaux Zeeman [18, 19] ainsi que des transitions entre des niveaux hyperfins [20] d'un même état ro-vibrationnel de l'ion H_2^+. Dans ces expériences, les ions sont piégés dans un piège de Paul hyperbolique et les transitions sont détectées par une méthode de photo-dissociation sélective. Les fréquences de transition hyperfine mesurées vont de 3,989 à 1276,271 MHz et ont permis de déterminer entièrement la structure hyperfine des états ro-vibrationnels pour $v = 4 - 8$ et $L = 1 - 2$. Dans les années 1990 Carrington et al. ont mesuré des transitions dipolaires électriques entre des niveaux ro-vibrationnels à la limite de dissociation de l'état électronique fondamental $1s\sigma_g$ et le niveau vibrationnel fondamental du premier état électronique excité $2p\sigma_u$. En particulier, ils ont observé la transition entre le dernier état lié de l'état électronique fondamental $1s\sigma_g(v=19, L=1)$ et l'état $2p\sigma_u(v=0, L=2)$. Un *splitting* inattendu a été observé dans deux des transitions et est interprété en termes de rupture de symétrie g/u due à l'hamiltonien hyperfin. Cette rupture de symétrie g/u peut conduire à des transitions dipolaires électriques entre des niveaux rotationnels adjacents interdites autrement. Cela a permis, dans les années 2000, à Critchley et al. d'observer et de mesurer la transition rotationnelle pure entre les niveaux $1s\sigma_g(v=19, L=1)$ et $1s\sigma_g(v=19, L=0)$ à 14961,7 MHz avec une incertitude relative de l'ordre de 7.10^{-5} [21, 22]. Dans les années 1990 et 2000, Lundeen et al. ont déterminé la structure hyperfine de l'état $(v=0, L=1)$ ainsi que la polarisabilité statique des ions H_2^+ en effectuant la spectroscopie dans le domaine micro-onde d'états de Rydberg de H_2 [23, 24, 25]. Des mesures de ce type ont également été développées dans le groupe de F. Merkt (Zürich) avec notamment la mesure de l'intervalle rotationnel fondamental [26]. Enfin on peut citer l'observation par ce même groupe d'états quasi-liés de H_2^+ [27].

1.1.3 La spectroscopie de H_2^+ : dispositif expérimental

L'expérience réalisée au LKB se propose de mesurer la fréquence de transition à deux photons sans effet Doppler entre les deux niveaux ro-vibrationnels $1s\sigma_g\,|v = 0, L = 2\rangle$ et $1s\sigma_g\,|v = 1, L = 2\rangle$ dans H_2^+ à 9,17 μm. Décrivons brièvement les différents éléments du dispositif expérimental.

- Afin de réaliser cette spectroscopie il est nécessaire de piéger les ions H_2^+. Pour cela on utilise un piège linéaire radio-fréquence.

- Les ions H_2^+ sont créés dans le niveau $1s\sigma_g\,|v=0, L=2\rangle$ à partir de molécules H_2 par une méthode de photo-ionisation résonante sélective en état connue sous

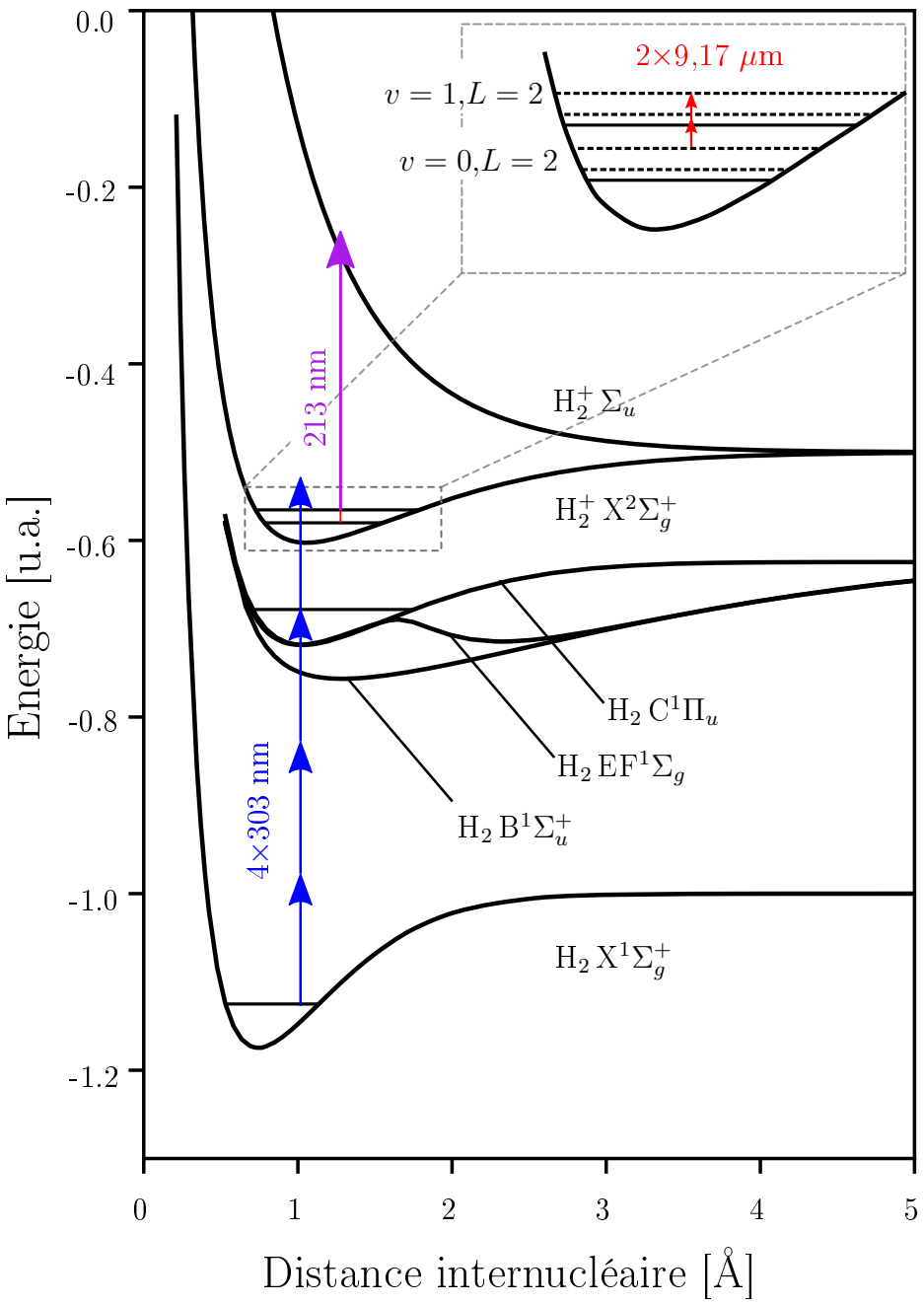

Fig 1.1: *États électroniques de H_2 et H_2^+ dans l'approximation de Born-Oppenheimer. Les flèches bleues représentent le processus REMPI à (3+1) photons à 303 nm qui permet de créer les ions H_2^+ dans le niveau $(v=0,L=2)$. Les deux flèches rouges et la flèche violette représentent le processus de spectroscopie REMPD qui consiste en une excitation à 2 photons entre les niveaux $(v=0,L=2)$ et $(v=1,L=2)$ de l'ion H_2^+ à 9,17 μm puis une photo-dissociation sélective en état vibrationnel à 213 nm. En balayant la fréquence du laser d'excitation, on s'attend à une perte maximale d'ions quand le laser est à résonance avec la fréquence de la transition.*

le nom de *Resonance Enhanced Multi-Photon Ionization* (REMPI) utilisant une transition à 3+1 photons à 303 nm (voir figure 1.1).

- L'ion H_2^+ étant une molécule diatomique homonucléaire, les transitions dipolaires électriques à un photon sont presque toutes interdites et ses niveaux sont métastables. Il est néanmoins possible de réaliser des transitions à deux photons. La spectroscopie par absorption simultanée de deux photons contrapropageants est une méthode connue depuis les années 1970. Bien que la probabilité d'une transition à deux photons soit assez faible, son avantage est de supprimer l'effet Doppler du premier ordre et donc cette source d'élargissement des raies.

- Néanmoins, vis-à-vis du niveau de précision souhaitée (10^{-12}), l'effet Doppler du second ordre est à prendre en compte. Il s'écrit :

$$\left|\frac{\Delta\nu}{\nu}\right|_{2D} = \frac{v^2}{2c^2} = \frac{\frac{1}{2}mv^2}{mc^2}, \tag{1.2}$$

où ν est la fréquence de la transition, $\Delta\nu$ est le décalage par effet Doppler et v est la vitesse des particules. Dans un piège linéaire radio-fréquence sans refroidissement les ions possèdent une énergie cinétique d'environ 1 eV pour une énergie de masse d'environ 2 GeV, l'effet relatif sur la fréquence de transition est alors de l'ordre de $5{,}0.10^{-10}$. Si on veut atteindre une incertitude relative $\leq 7{,}6.10^{-12}$ (valeur théorique actuelle) il est donc nécessaire de refroidir les ions H_2^+. Malheureusement la structure complexe des niveaux d'énergie de H_2^+, comme pour la plupart des molécules, ne convient pas au refroidissement laser, en particulier dans le cas de H_2^+ où les transitions dipolaires électriques sont interdites. C'est pourquoi on va refroidir les ions par la méthode de refroidissement sympathique [28]. Cette méthode consiste à piéger une autre espèce ionique dans le même piège linéaire et à refroidir ces ions par laser. Les ions H_2^+ présents dans le piège sont, par interaction coulombienne, refroidis à leur tour. Le refroidissement sympathique est d'autant plus efficace que les masses des deux espèces sont proches. C'est pourquoi nous avons choisi l'ion béryllium qui est l'espèce la plus légère possédant une transition propice au refroidissement laser, à 313 nm.

- Le laser de spectroscopie est un laser à cascade quantique (QCL) à 9,17 μm asservi sur un laser à CO_2 (spectralement fin) lui-même asservi sur une raie moléculaire dans l'acide formique. La transition à deux photons étant très faible, on utilise une cavité Fabry Perot placée, sous vide, autour des ions H_2^+ afin d'augmenter l'intensité du faisceau de spectroscopie et ainsi augmenter la probabilité de transition. Afin de s'assurer d'avoir le maximum de recouvrement entre le faisceau de spectroscopie, dont la position est fixée par la cavité, et les ions H_2^+ piégés, le piège est monté sur un système de deux translations.

- Les niveaux ro-vibrationnels de l'ion H_2^+ étant métastables (car les transitions dipolaires électriques sont interdites), la transition à deux photons ne peut pas être détectée par fluorescence. Pour la détection on utilise une méthode de photo-dissociation sélective de l'état excité $1s\sigma_g\,|v=1, L=2\rangle$ à l'aide d'un laser à 213 nm connue sous le nom de *Resonance Enhanced Multi-Photon Dissociation spectroscopy* (spectroscopie REMPD). Cette méthode repose sur le

fait que la section efficace de photo-dissociation à 213 nm de l'état excité $v = 1$ est 72 fois plus importante que celle de l'état fondamental $v = 0$. Ainsi on observe un maximum d'ions dissociés quand le laser de spectroscopie à 9,17 μm est précisément à la fréquence de la transition $(v{=}0,L{=}2) \rightarrow (v{=}1,L{=}2)$.

1.1.4 Organisation du manuscrit

Dans la suite de cette introduction nous discutons succinctement de la spectroscopie de l'ion H_2^+ et présentons les propriétés du spectre attendu et les effets systématiques à prendre en compte dans la perspective d'une détermination de m_p/m_e.
Le chapitre 2 présente la théorie du piégeage d'ions et décrit ensuite les deux pièges qui nous ont permis d'obtenir les résultats présentés dans cette thèse. Il se termine par la présentation des méthodes de création des ions Be^+ nécessaires au refroidissement sympathique.
Le chapitre 3 décrit la production d'ions H_2^+ sélectionnés en état interne au moyen d'un jet moléculaire d'atomes d'hydrogène et d'un laser de photo-ionisation à 303 nm qui permet de créer les ions H_2^+ dans l'état $(v = 0,L = 2)$ par la méthode REMPI.
Le chapitre 4 est consacré à la photo-dissociation (REMPD) des ions H_2^+ à 213 nm. On présente le modèle qui nous a permis de caractériser la distribution des états ro-vibrationnels des ions créés par impact électronique puis par la méthode REMPI.
Le chapitre 5 présente le refroidissement laser des ions Be^+ à 313 nm. On commence par une description théorique simplifiée du refroidissement Doppler, puis on présente la source laser à 313 nm et en particulier la cavité de doublage.
Le chapitre 6 est consacré à la création, au piégeage et au refroidissement des ions. On introduit dans un premier temps la notion de cristal de Coulomb et on discute du refroidissement sympathique. On présente ensuite les moyens qui permettent de détecter les ions puis les premiers cristaux de Coulomb que nous avons obtenus. Le chapitre se termine par la présentation des méthodes qui permettent de compter les ions Be^+ et H_2^+.
Dans le chapitre 7 on décrit la source laser qui permet d'exciter la transition vibrationnelle de H_2^+. On discute du laser de spectroscopie (le laser à cascade quantique), ainsi que de la référence de fréquence (le laser à CO_2). Finalement, on présente la cavité de haute finesse qui permet d'augmenter l'intensité lumineuse du faisceau de spectroscopie afin de maximiser le taux de transition à 2 photons.

1.2 L'ion H_2^+

Dans l'approximation de Born-Oppenheimer, les énergies électroniques sont calculées dans l'hypothèse où les noyaux sont fixes. La figure 1.1 montre les énergies des premiers états électroniques de H_2 et H_2^+ en fonction de la distance inter-nucléaire. Chaque courbe de potentiel peut être utilisée pour quantifier le mouvement des noyaux et obtenir la structure ro-vibrationnelle de H_2 ou H_2^+. La structure vibrationnelle est approximativement donnée par $E_v = \hbar\omega_e\,(v + 1/2)$ et la structure rotationnelle est approximativement donnée par $E_r = B_v J\,(J + 1)$. Pour l'ion moléculaire H_2^+ la fréquence vibrationnelle vaut $\omega_e/2\pi \simeq 65$ THz et la constante rotationnelle vaut $B_v/h \simeq 0{,}87$ THz. La fréquence de la transition à deux photons qui nous intéresse

L	ν_{2ph} (MHz)	λ_{2ph} (μm)
0	32 844 161,855 0(3)	9,128
2	32 706 607,808 0(3)	9,166

Tableau 1.2: *Fréquences et longueurs d'onde sans structure fine pour les transitions à deux photons (v=0,L → v=1,L), où $L = 0$ ou 2. Elles ont été calculées dans [9].*

($v = 0$,$L = 2$) → ($v = 1$,$L = 2$) est de l'ordre de 32,7 THz. Une incertitude relative de 10^{-12} sur la mesure de cette transition correspond à une résolution en ordre de grandeur de 33 Hz. Notre équipe en collaboration avec V. Korobov a développé des méthodes de calculs très précises afin de déterminer les énergies non relativistes sans faire l'approximation de Born-Oppenheimer en prenant en compte la dynamique des 3 corps et de calculer les corrections relativistes et radiatives. Ces calculs se séparent en deux parties, une partie indépendante du spin pour laquelle les résultats les plus récents (et les plus précis) ont été publiées dans [9], et une partie dépendante du spin : la structure hyperfine dont le hamiltonien effectif a été calculé à l'ordre dominant par V. Korobov [29]. Les calculs ont par la suite été poussés plus loin sur le terme dominant du hamiltonien hyperfin, permettant d'obtenir pour la première fois un excellent accord avec les expériences de spectroscopie RF de K.B. Jefferts ([20]) [30, 31]. Dans la suite de cette partie nous allons décrire plus en détail la structure hyperfine et nous allons déterminer le spectre attendu lors de la spectroscopie vibrationnelle à deux photons des ions H_2^+. On s'appuie en grande partie sur la thèse de F. Bielsa [32] et sur l'article de J.P. Karr et al. [33].

1.2.1 Structure hyperfine

Nous allons établir la structure hyperfine des raies à deux photons que nous allons sonder dans notre expérience. On note $\mathbf{S}_e$ le spin de l'électron et $\mathbf{I}_1$ et $\mathbf{I}_2$ les spins des deux protons, avec $S_e = I_1 = I_2 = 1/2$ les nombres quantiques associés. On introduit le spin nucléaire total $\mathbf{I}$=$\mathbf{I}_1$+$\mathbf{I}_2$, où $I = 0$ ou 1 et le moment cinétique orbital $\mathbf{L}$ de nombre quantique L. Notons ici que le principe de Pauli a une influence importante sur la structure hyperfine de H_2^+, à cause de la symétrie d'échange des noyaux. Le principe de Pauli impose que le spin nucléaire total I vaut 0 quand L est pair et vaut 1 quand L est impair. Cela a deux conséquences :

- la règle de sélection des transitions dipolaires électriques (sans changer d'état électronique) étant $\Delta L = \pm 1$, les transitions à un photon entre les niveaux ro-vibrationnels de même état électronique sont interdites, c'est pourquoi on sonde la transition avec deux photons,

- la structure hyperfine des niveaux L pairs est plus simple que celle des niveaux L impairs, c'est l'une des raisons qui a conduit au choix de sonder la transition (v=0,L=2 → v=1,L=2).

L'hamiltonien effectif hyperfin de l'ion H_2^+ se met sous la forme [29] :

L	S_e	I	F	J	n
0	$\frac{1}{2}$	0	$\frac{1}{2}$	$\frac{1}{2}$	1
1	$\frac{1}{2}$	1	$\frac{1}{2}$	$\frac{1}{2},\frac{3}{2}$	5
			$\frac{3}{2}$	$\frac{1}{2},\frac{3}{2},\frac{5}{2}$	
pair ≥ 2	$\frac{1}{2}$	0	$\frac{1}{2}$	$L-\frac{1}{2},L+\frac{1}{2}$	2
impair ≥ 3	$\frac{1}{2}$	1	$\frac{1}{2}$	$L-\frac{1}{2},L+\frac{1}{2}$	6
			$\frac{3}{2}$	$L-\frac{3}{2},L-\frac{1}{2},L+\frac{1}{2},L+\frac{3}{2}$	

Tableau 1.3: *Valeurs possibles des nombres quantiques F et J en fonction des nombres quantiques L, S_e et I. La dernière colonne n est le nombre de niveaux de structure hyperfine.*

$$\begin{aligned} H_{hfs} = & b_F(\mathbf{I}.\mathbf{S}_e) + c_e(\mathbf{L}.\mathbf{S}_e) + c_I(\mathbf{L}.\mathbf{I}) \\ & + \frac{d_1}{(2L-1)(2L+3)}\left(\frac{2}{3}\mathbf{L}^2(\mathbf{I}.\mathbf{S}_e) - (\mathbf{L}.\mathbf{I})(\mathbf{L}.\mathbf{S}_e) - (\mathbf{L}.\mathbf{S}_e)(\mathbf{L}.\mathbf{I})\right) \\ & + \frac{d_2}{(2L-1)(2L+3)}\left(\frac{1}{3}\mathbf{L}^2\mathbf{I}^2 - \frac{1}{2}(\mathbf{L}.\mathbf{I}) - (\mathbf{L}.\mathbf{I})^2\right). \end{aligned} \tag{1.3}$$

Les coefficients b_F, c_e, c_I, d_1 et d_2 ont été calculés numériquement pour l'ensemble des niveaux ro-vibrationnels (v,L) avec $0 \leq L \leq 4$ et $0 \leq v \leq 4$ [29].

Dans le cas où $I = 1$ et L est impair, le couplage spin-spin (premier terme dans l'équation 1.3) est prépondérant, on utilise donc le schéma de couplage suivant :

$$\mathbf{F} = \mathbf{S}_e + \mathbf{I} \quad \text{et} \quad \mathbf{J} = \mathbf{L} + \mathbf{F},$$

où $\mathbf{F}$ est le spin total de nombre quantique F et $\mathbf{J}$ est le moment angulaire total de nombre quantique J. Les valeurs possibles de F et J sont données dans le tableau 1.3. Dans le cas où $I = 0$ et L est pair, la structure hyperfine est bien plus simple, on a seulement $F = 1/2$. On remarque aussi que les niveaux $L = 0$ n'ont pas de structure hyperfine. Les déplacements hyperfins ont été calculés et sont donnés dans les tableaux II et III de l'article [33] pour L pairs et impairs respectivement. Les figures 1.2 et 1.3 montrent les structures hyperfines des premiers états ro-vibrationnels de l'ion H_2^+.

Sous l'effet d'un champ magnétique, chaque niveau hyperfin J se sépare en $2J+1$ sous niveaux Zeeman notés m_J (ex. un niveau de $J = 5/2$ se sépare en 6 sous niveaux Zeeman $m_J = (-5/2, -3/2, -1,2, +1/2, +3/2, +5/2))$ qui ne sont pas représentés sur les figures 1.2 et 1.3.

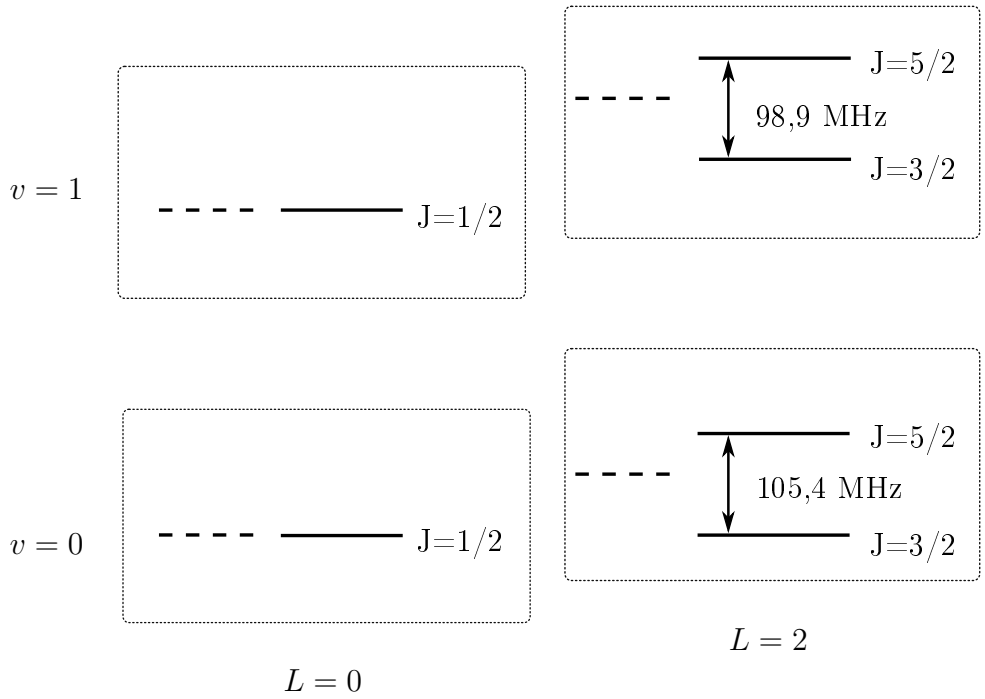

Fig 1.2: *Structure hyperfine des niveaux v = 0,1, L = 0,2 de H_2^+. Les pointillés correspondent à la position des niveaux en ne prenant pas en compte la structure hyperfine.*

1.2.2 Spectre de transition à deux photons

Le taux de transition à 2 photons à résonance entre deux niveaux hyperfins est donné par :

$$\Gamma = \left(\frac{4\pi a_0^3}{\hbar c}\right)^2 (1+\epsilon)^4 \frac{4}{\Gamma_f} I^2 \left[{}^S Q_{q_1,q_2}\right]^2, \tag{1.4}$$

où a_0 est le rayon de Bohr, Γ_f est la largeur effective de la transition, $\epsilon = \frac{1}{1+2m_p/me} \simeq 1$, I est l'intensité du laser et $[{}^S Q_{q_1,q_2}]$ est l'élément de matrice de l'opérateur transition à deux photons en unité atomique où q_1 et q_2 sont les polarisations des deux photons contra-propageants. Les coefficients $A = [{}^S Q_{q_1,q_2}]$ sont donnés dans les tableaux VI, VII et VIII de la référence [33] pour les transitions entre les niveaux (v=0,L) et (v=1,L) pour L = 0, 2, L = 1 et L = 3 et pour les polarisations $\pi\pi$, $\sigma^+\sigma^+$ et $\sigma^+\sigma^-$. A partir de ces données, on trace sur la figure 1.4 le spectre hyperfin attendu pour chacune des transitions évoquées ci-dessus.

Les règles de sélection pour une transition ro-vibrationnelle dipolaire électrique à deux photons sont :

$$\Delta L = 0, \pm 2 \quad \text{et} \quad \Delta J = 0, \pm 1, \pm 2.$$

Les règles de sélection sur m_J et $m_{J'}$ dépendent de la polarisation de chaque photon. La différence $\Delta M_J = m'_J - m_J$ doit être égale à 0 pour $\pi\pi$ et $\sigma^+\sigma^-$ et à +2 (−2) pour $\sigma^+\sigma^+$ ($\sigma^-\sigma^-$).

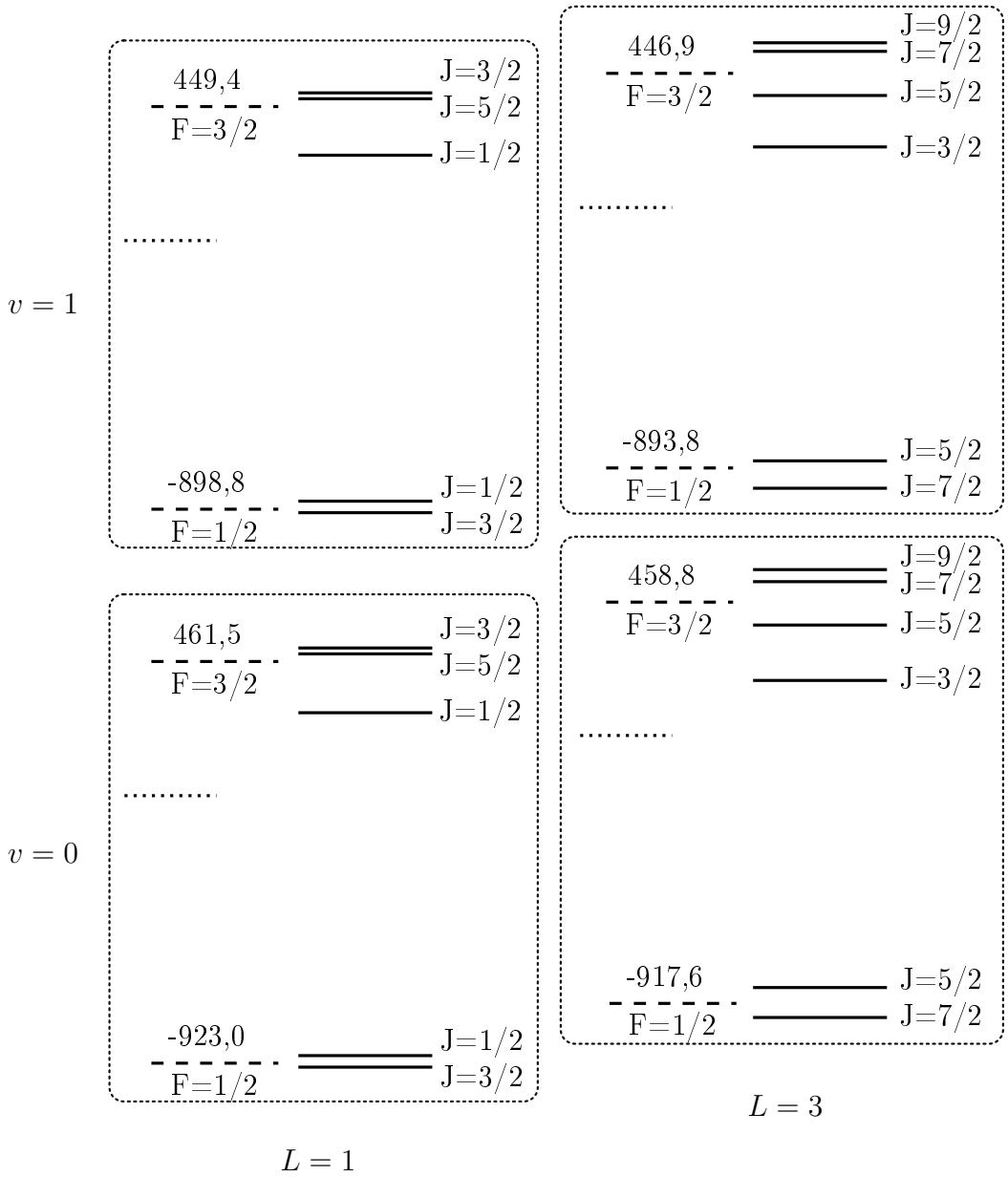

Fig 1.3: *Structure hyperfine des niveaux v = 0,1, L = 1,3 de H_2^+. Les décalages sont donnés en MHz. Les pointillés correspondent à la position des niveaux en ne prenant pas en compte la structure hyperfine. Les tirets correspondent aux spectres en ne prenant en compte que le couplage spin-spin prépondérant. Les traits pleins correspondent à la structure hyperfine complète.*

La structure la plus simple est obtenue pour le cas $L = 0$ où il n'y a pas de structure hyperfine. La probabilité de transition a été calculée dans la référence [6] pour les polarisations $\pi\pi$. La transition est interdite pour les polarisations $\sigma^+\sigma^+$ à cause de la règle de sélection $\Delta M_J = 2$. Dans le cas $L = 2$, il y a deux transitions $\Delta J = 0$ intenses et deux transitions $\Delta J = \pm 1$ plus faibles. Les spectres dans le cas où L est impair sont plus complexes. Ils consistent en un regroupement de transitions $\Delta F = 0$ intenses et deux autres regroupements satellites de transitions $\Delta F = \pm 1$ moins intenses. Le nombre total de transitions est 25 (34) pour $L = 1$ ($L \geq 3$). Indépendamment des valeurs de L, les transitions entre des états qui ont des structures

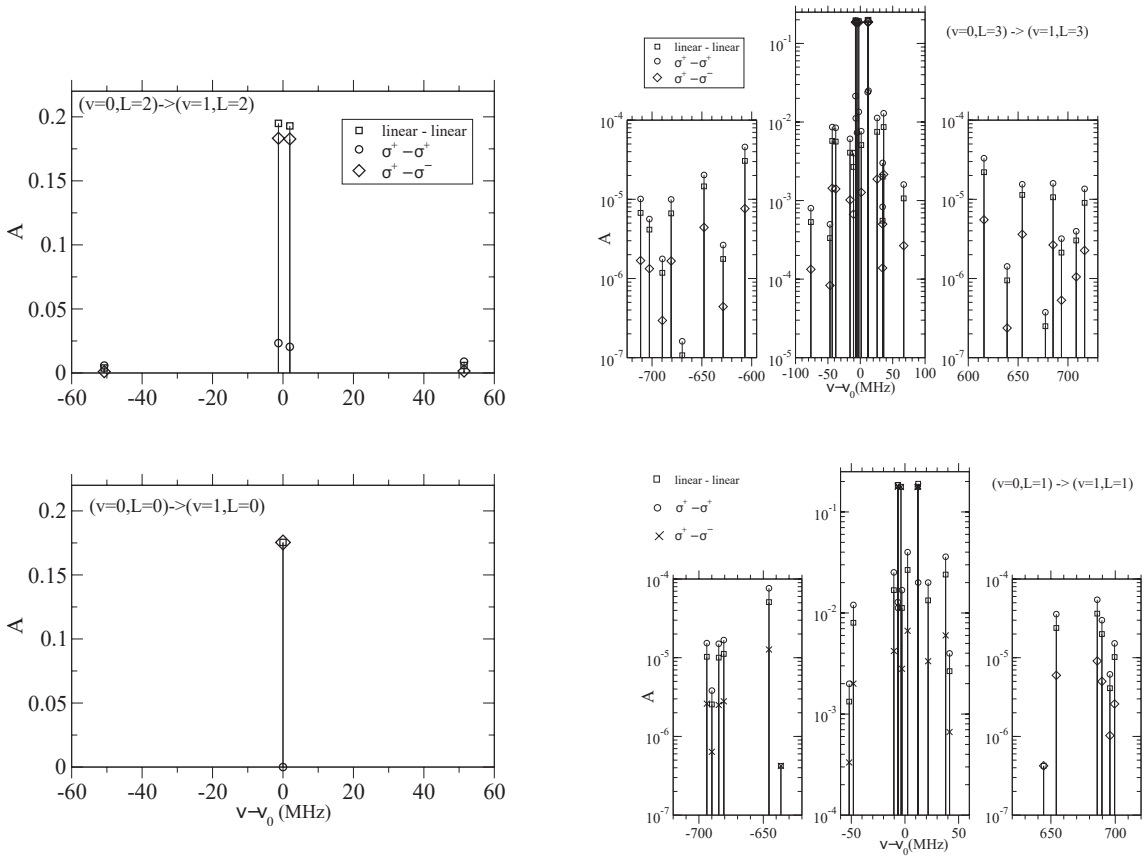

Fig 1.4: *Probabilités de transition à deux photons en unités atomiques entre les états $v = 0$,L et $v = 1$,L pour L =0, 1, 2 ou 3. Les spectres sont centrés sur les fréquences de transitions sans structure hyperfine. Les carrés correspondent aux polarisations $\pi\pi$, les cercles aux polarisations $\sigma^+\sigma^+$ et les losanges aux polarisations $\sigma^+\sigma^-$.*

de spin similaires (c'est-à-dire de même F ou J) sont privilégiées. Ces transitions sont d'autant plus intéressantes que les effets systématiques, tel que le décalage par effet Zeeman des niveaux (voir Réf. [34]), ont des valeurs similaires, de sorte que les décalages sur les fréquences de transition sont très faibles. C'est aussi vrai pour la structure hyperfine. Comme on peut le voir sur la figure 1.4, les transitions les plus intenses sont centrées et proches de la fréquence de transition sans structure hyperfine. Cela vient du fait que les corrections hyperfines des états initiaux et finaux se compensent fortement, ce qui a pour conséquences de réduire les incertitudes théoriques sur ces fréquences de transitions par rapport aux autres.

Les raies les plus appropriées pour la détermination du rapport de masse μ_{pe} sont donc les raies (v=0,L=0 $\rightarrow$ v=1,L=0) à 9,128 μm et (v=0,L=2) $\rightarrow$ (v=1,L=2) 9,166 μm. Nous possédons deux lasers QCL à ces deux longueurs d'onde afin de sonder ces transitions. Cependant, à l'heure actuelle seul le laser QCL à 9,166 μm est opérationnel.

Dans notre expérience on s'intéresse donc en priorité aux deux raies intenses $|v = 0, L = 2, J\rangle \rightarrow |v' = 1, L' = 2, J'\rangle$ où $J = J' = 3/2$ ou $5/2$. Dans ce cas, l'hamiltonien effectif hyperfin se réduit au terme $c_e(\mathbf{L}.\mathbf{S}_e)$ et le moment angulaire

$J = J'$	ν_{2ph} (MHz)
3/2	32 706 609,751
5/2	32 706 606,512

Tableau 1.4: *Fréquences pour les transitions à deux photons* $|v = 0, L = 2, J\rangle \rightarrow |v' = 1, L' = 2, J'\rangle$ *où* $J = J' = 3/2$ *ou* $5/2$.

total s'écrit $\mathbf{J} = \mathbf{L} + \mathbf{S}_e$, on peut donc écrire :

$$H_{hfs} = \frac{c_e}{2}\left(\mathbf{J}^2 - \mathbf{L}^2 - \mathbf{S}_e^2\right) \tag{1.5}$$

Pour le niveau (v=0,L=2) on a c_e = 42,1625(20) MHz et pour le niveau (v=1,L=2) on a c_e = 39,5716(20) MHz. Les valeurs propres des opérateurs $\mathbf{J}^2$, $\mathbf{L}^2$ et $\mathbf{S}_e^2$ sont $J(J+1)$, $L(L+1)$ et $S_e(S_e+1)$ respectivement. On en déduit les déplacements en fréquence des niveaux hyperfins 3/2 : $\nu_{hfs}(J = 3/2) = -\frac{3c_e}{2}$ et 5/2 : $\nu_{hfs}(J = 5/2) = c_e$ où le coefficient c_e dépend de l'état ro-vibrationnel considéré. Les deux raies intenses sont donc décalées de la fréquence de transition sans effet de spin ν_{tot} donnée dans le tableau 1.1 de la quantité $-\frac{3}{2}[c_e(v = 1) - c_e(v = 0)]$ dans le cas $J = 3/2$ et $[c_e(v = 1) - c_e(v = 0)]$ dans le cas $J = 5/2$. Les fréquences de ces raies pour 1 photon sont données dans le tableau 1.4.

1.2.3 Effets systématiques

On s'intéresse finalement aux effets systématiques possibles afin d'évaluer leur impact sur la mesure expérimentale et de déterminer s'ils constituent ou pas un obstacle au niveau de précision souhaité de l'ordre de 10^{-12}.

Effet Doppler du second ordre

La discussion de l'effet Doppler du second ordre au début de cette introduction montre la nécessité de refroidir les ions H_2^+ afin de pouvoir atteindre une incertitude relative de quelques 10^{-12}. La description du refroidissement laser des ions Be^+ (voir chapitre 5) et du refroidissement sympathique des ions H_2^+ (voir chapitre 6.1.2) est faite dans la suite de ce manuscrit. Nous verrons que le refroidissement laser permet d'atteindre une température limite de l'ordre de 10 mK. L'incertitude relative sur la fréquence de transition due à l'effet Doppler du second ordre (voir équation 1.2) à cette température vaut : $|\Delta\nu/\nu| = k_B T/mc^2 = 4{,}6.10^{-16} \ll 10^{-12}$. Cet effet est donc négligeable vis-à-vis de la précision expérimentale attendue. Nous verrons aussi que (voir section 2.1), dans un piège radio-fréquence, le mouvement d'un ion peut être décrit comme la superposition d'un mouvement lent de grande amplitude (le macro-mouvement) et d'un mouvement rapide de petite amplitude (le micro-mouvement) [35, 36]. Nous verrons aussi qu'un excès de micro-mouvement, causé par la présence d'un champ DC résiduel par exemple, peut être compensé afin de le rendre lui aussi négligeable (voir section 6.5).

Effets Stark

L'effet Stark statique est principalement dû au champ électrique créé par le potentiel de piégeage. Dans une approche perturbative, le décalage en fréquence d'un état ro-vibrationnel induit par un champ électrique E vaut :

$$\delta\nu_v = -\frac{1}{2h}\epsilon_0\alpha_v E^2, \tag{1.6}$$

où α_v est la polarisabilité du niveau vibrationnel v. L'article [37] donne les polarisabilités de l'ion H_2^+ des états $v = 0$ à 10. Pour la transition qui nous intéresse, on a $\alpha_0/4\pi a_0^3 \simeq 3{,}17$ et $\alpha_1/4\pi a_0^3 \simeq 3{,}90$. Dans notre piège l'amplitude maximale du champ électrique est typiquement de l'ordre de 5 kV/m. Le décalage en fréquence induit par l'effet Stark statique sur la fréquence de la transition (v=0,$L \to v$=1,L) de l'ion H_2^+ est donc de l'ordre de $\Delta\nu \simeq 0{,}23$ Hz, soit 7.10^{-15} relativement à la fréquence de transition.

L'effet Stark dynamique (ou déplacement lumineux) induit par le laser de spectroscopie à 9,17 μm peut aussi être estimé de manière perturbative. L'équation 8 de la référence [37] donne le déplacement lumineux d'un état ro-vibrationnel (v,$L = 0$) en fonction de l'intensité lumineuse I et de la fréquence du laser. Dans le cas où $L \neq 0$ l'expression est plus compliquée car il y a une composante tensorielle dépendant des sous-niveaux magnétiques m_J, $m_{J'}$. On trouve l'expression générale dans l'article [38]. Dans le cas où on cherche le déplacement moyenné sur m_J, $m_{J'}$, on ne prend en compte que la composante scalaire et on retrouve la même formule que dans le cas $L = 0$. On en déduit ainsi le décalage en fréquence dû à l'effet Stark dynamique sur la fréquence de la transition (v=0,$L \to v$=1,L), qui vaut :

$$\Delta\nu = \frac{1}{2hc}(1+\epsilon)^2\frac{I}{2}\left(Q_1^{LS} - Q_0^{LS}\right) \tag{1.7}$$

où $Q_1^{LS}/4\pi a_0^3 = -3{,}935\,9$ et $Q_0^{LS}/4\pi a_0^3 = -3{,}197\,8$ sont respectivement les polarisabilités dynamiques des états ($v = 1$) et ($v = 0$) données dans la référence [38]. Les déplacements lumineux donnés ici correspondent à des fréquences laser bien en dessous de toute résonance à un photon entre deux états d'H_2^+, donc les polarisabilités dynamiques impliquées dans le déplacement lumineux peuvent être considérées comme des polarisabilités quasi-statiques, ce qui explique pourquoi Q_v^{LS} est toujours très proche de la polarisabilité statique α_v. Pour une intensité laser de l'ordre de 20 W/mm^2, on obtient un déplacement lumineux de l'ordre de $\Delta\nu \simeq 34$ Hz, soit à nouveau 1.10^{-12} relativement à la fréquence de transition.

Effet Zeeman

Le décalage en fréquence $\Delta\nu$ d'une transition à deux photons (v,L,F,$J \to v'$,L,F',J') dans un champ magnétique B induit par effet Zeeman est donnée par [34] :

$$2h\Delta\nu = \left[m'_J\tilde{g}_J(v',L,F',J') - m_J\tilde{g}_J(v,L,F,J)\right]\mu_B B, \tag{1.8}$$

où μ_B est le magnéton de Bohr et $\tilde{g}_J(v,L,F,J)$ et $\tilde{g}_J(v',L,F',J')$ sont respectivement les facteurs de Landé des états initial et final. Dans le cas de polarisations linéaires,

la règle de sélection est $\Delta M_J = 0$ et m_J peut prendre les valeurs $-J, -J+1,...,J$. Il n'y a donc pas de déplacement global des raies, et l'écart en fréquence entre les valeurs extrêmes de m_J est :

$$h\Delta\nu = [\tilde{g}_J(v',L,F',J') - \tilde{g}_J(v,L,F,J)]\, J\mu_B B. \tag{1.9}$$

Nous avons vu précédemment que les transitions à deux photons ($v=0,L \rightarrow v=1,L$) les plus intenses sont celles entre états de même nombre quantique F et J. Les deux transitions qui nous intéressent sont donc ($v=0,L=2,F=1/2,J=3/2 \rightarrow v'=1,L=2,F'=1/2,J'=3/2$) et ($v=0,L=2,F=1/2,J=5/2 \rightarrow v'=1,L=2,F'=1/2,J'=5/2$). Le tableau II de la référence [34] donne les facteurs de Landé pour ces transitions. On en déduit l'écart en fréquence entre les deux sous niveaux Zeeman de m_J extrêmes pour les deux transitions qui nous intéressent. A titre d'illustration, en présence du champ magnétique terrestre $B = 5{,}0.10^{-5}\,\mathrm{T}$: $\Delta\nu_{3/2} = 6{,}4\,\mathrm{Hz}$ et $\Delta\nu_{5/2} = 7{,}2\,\mathrm{Hz}$, soit $2{,}0.10^{-13}$ et $2{,}2.10^{-13}$ relativement à la fréquence de transition. L'effet Zeeman sur ces transitions ne sera donc pas un facteur limitant pour notre expérience de spectroscopie.

1.2.4 Conclusion

Le choix de la transition à mesurer pour la détermination du rapport de masse μ_{pe} dépend essentiellement de la structure hyperfine de la raie, de la probabilité de transition et de la disponibilité d'une source laser à cette fréquence de transition. Nous venons de montrer que la raie ($v=0,L=2$) $\rightarrow$ ($v=1,L=2$) est la raie la plus appropriée vis-à-vis de ces critères. Le niveau de précision théorique actuel sur le calcul de cette fréquence de transition est de 500 Hz, ce qui va faciliter la recherche expérimentale d'une transition à deux photons.

Finalement, aucun des effets systématiques étudiés ne constitue un obstacle pour une mesure à un niveau de précision de 10^{-12}. Certains effets systématiques n'ont pas été pris en compte (shift quadrupolaire, "BBR shift" induit par le rayonnement de corps noir...) mais leur ordre de grandeur est encore plus faible que celui des effets étudiés ci-dessus. Pour plus de détails sur l'étude de ces effets systématiques on peut se référer à l'article [39].

1.3 Projet GBAR

L'objectif de la collaboration internationale GBAR [40] (Gravitational Behaviour of Antihydrogen at Rest) est de mesurer l'effet du champ gravitationnel terrestre sur les atomes d'antimatière $\overline{\mathrm{H}}$. Cette expérience représenterait le premier test du principe d'équivalence faible sur l'antimatière. Ce problème est intéressant car une quelconque différence entre la matière et l'antimatière permettrait d'expliquer la quasi-absence d'antimatière dans l'Univers. Trois projets ont donc été lancés pour tester le comportement de l'antimatière en mesurant l'effet de la gravitation terrestre sur l'antihydrogène. Ces trois expériences, Alpha-g, AEGIS et GBAR et exploiteront la source d'antiprotons du CERN afin d'étudier le comportement de

l'antimatière face à la gravité. L'approche choisie par le projet GBAR pour lequel notre équipe collabore [41, 42] est d'étudier la chute libre d'atome d'$\overline{\mathrm{H}}$. Pour pouvoir mesurer des temps de chute libre avec assez de précision il est nécessaire de réduire le plus possible l'effet de l'agitation thermique des atomes. Pour cela, ils doivent être refroidis à des températures très basses de l'ordre de $1\,\mu$K. Il est possible de faire du refroidissement Doppler à 121 nm sur les atomes $\overline{\mathrm{H}}$, mais dans ce cas la limite de température Doppler reste encore trop grande pour l'expérience. Le projet GBAR proposé par Waltz et Hänsch [43] consiste à créer et piéger un ion $\overline{\mathrm{H}}^+$ (composé d'un antiproton et de deux positrons) puis à le refroidir par la méthode de refroidissement sympathique par l'intermédiaire d'ions Be^+ refroidis par laser, et finalement, photo-détacher le positron en excès très proche du seuil afin d'obtenir un atome $\overline{\mathrm{H}}$ très lent pour lequel on peut mesurer un temps de chute libre.

Chapitre 2

Piégeage d'ions

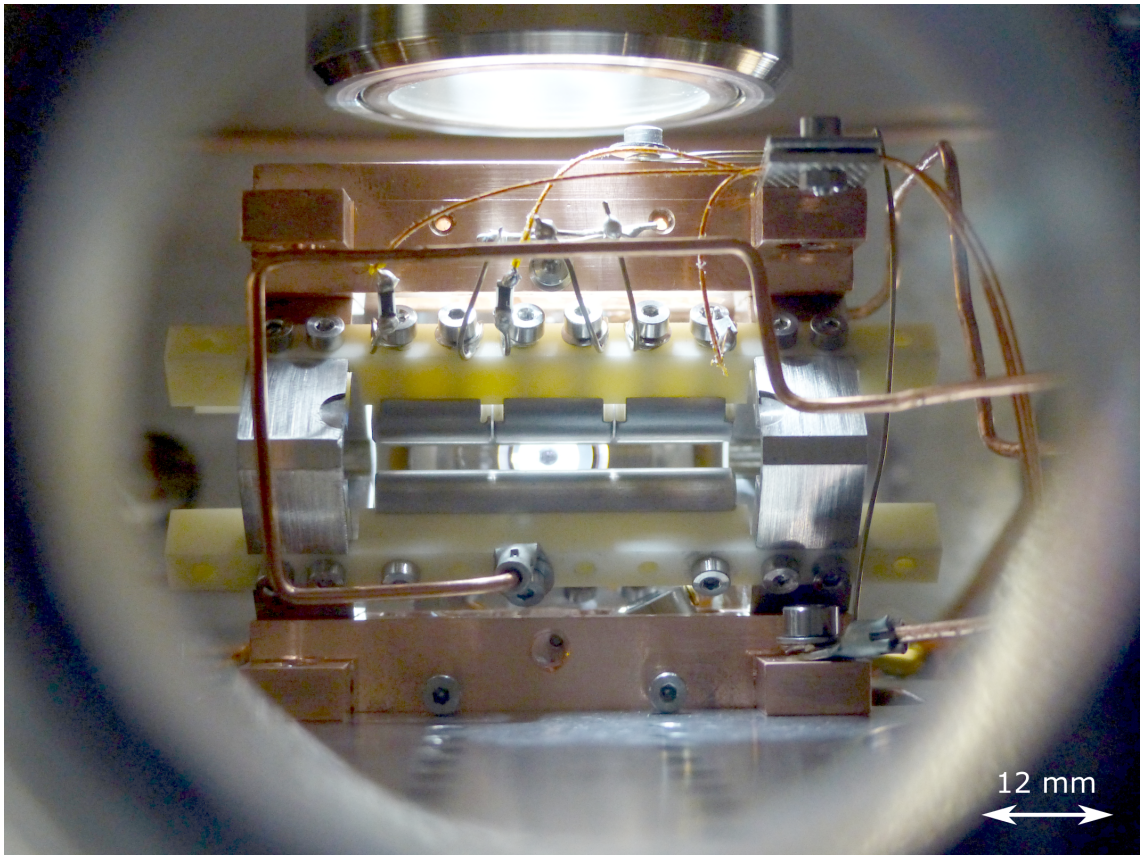

Fig 2.1: *Photo du piège linéaire sous vide. En haut la fenêtre d'observation des ions, au centre un jeu d'électrodes segmentées et une électrode RF.*

L'objectif de ce chapitre est de présenter les caractéristiques essentielles des pièges à ions auxquelles on se réfère dans les parties suivantes. Dans la première partie on présente la théorie du piégeage d'ions en s'intéressant en particulier aux pièges radio-fréquence. On présente ensuite les deux pièges à ions de notre expérience : un piège hyperbolique et un piège linéaire, ainsi que l'électronique qui permet de faire fonctionner le piège linéaire. Dans la deuxième partie on décrit l'enceinte à vide dans laquelle se trouve le piège linéaire et le système de pompes qui permet d'atteindre

un vide compatible avec notre expérience de spectroscopie. Finalement, la troisième partie décrit les éléments qui permettent de créer des ions Be^+. On commence par la description du four à béryllium qui permet de créer le jet effusif d'atome de Be, puis on présente les deux méthodes d'ionisation qui permettent d'obtenir des ions Be^+ : l'ionisation par impact électronique à l'aide d'un canon à électron et la photo-ionisation à l'aide d'un laser en impulsion à 213 nm.

2.1 Piège radio-fréquence

2.1.1 Confinement d'une particule chargée

Afin de piéger une particule en un point de l'espace, il faut pouvoir créer une force de rappel dans les trois dimensions de l'espace. Pour une particule chargée, l'application d'un champ électrique harmonique dans les trois directions de l'espace, de la forme

$$\Phi = \frac{\Phi_0}{2r_0^2}\left(\alpha x^2 + \beta y^2 + \gamma z^2\right) \tag{2.1}$$

où Φ_0 est un potentiel statique, r_0 est une dimension caractéristique du piège et α, β et γ sont des constantes sans dimensions, semble permettre de créer une telle force. Néanmoins, ce potentiel doit obéir à l'équation de Laplace $\triangle\ \Phi = 0$, ce qui se traduit, pour le potentiel de l'équation 2.1, par :

$$\alpha + \beta + \gamma = 0 \tag{2.2}$$

Cette équation traduit l'impossibilité de piéger une particule dans l'espace à l'aide d'un potentiel statique. En effet, afin de satisfaire l'équation 2.2, au moins une des constantes devra être négative, et le potentiel sera toujours déconfinant dans au moins une direction de l'espace.

Pour remédier à cela il existe deux solutions. La première solution consiste à ajouter un champ magnétique statique dont la direction est orthogonale aux axes déconfinants, c'est le piège de Penning [44]. La deuxième solution consiste à appliquer un potentiel quadrupolaire électrique alternatif, permettant ainsi d'alterner temporellement les directions selon lesquelles le potentiel est confinant. Pour une fréquence d'oscillation et une amplitude de potentiel adaptées, l'effet moyen se traduit par un confinement des particules. Cette solution a été proposée par Paul en 1958 [45], ce type de piège se nomme piège radio-fréquence (ou piège de Paul).

2.1.2 Le piège hyperbolique

La première réalisation d'un piège de Paul consiste en une géométrie basée sur la solution $\alpha = \beta = 1$ et $\gamma = -2$ de l'équation 2.2. Les électrodes sont en forme d'hyperboloïde de révolution (fig. 2.2) et on appelle ce piège : piège hyperbolique.

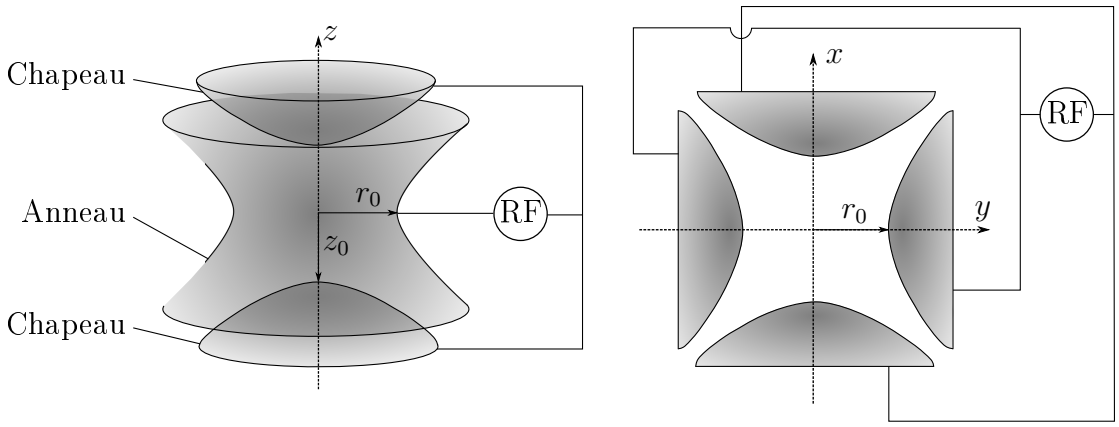

Fig 2.2: *Droite : schéma d'un piège hyperbolique. Gauche : schéma d'un piège linéaire d'axe* $\boldsymbol{z}$*. Les électrodes sont des barreaux othogonaux à la page.*

Le champ RF est appliqué sur l'anneau central et les électrodes chapeaux sont à la masse. Un défaut principal de ce type de piège est le manque d'accès optique au centre du piège. Il est nécessaire de faire un trou dans l'électrode anneau afin d'injecter un laser dans le piège. L'imagerie des ions dans le piège est difficile et a un faible taux de collection. De plus, le micromouvement dont on parlera dans la suite n'est nul qu'au centre du piège.

Nous avons à notre disposition un piège hyperbolique dont les caractéristiques sont $r_0 = 4{,}2\,\mathrm{mm}$, $z_0 = 3\,\mathrm{mm}$ et $\Omega/2\pi = 13{,}40\,\mathrm{MHz}$. Bien que l'expérience principale soit réalisée dans un piège linéaire que nous décrirons dans la partie suivante, le piège hyperbolique nous a permis de tester la création des ions H_2^+ par la méthode REMPI (voir section 3.2) ainsi que la photo-dissociation des ions H_2^+ par laser (voir chapitre 4).

2.1.3 Le piège linéaire

Une deuxième géométrie est basée sur la solution $\alpha = -\beta = 1$ et $\gamma = 0$ de l'équation 2.2, qui consiste à supprimer le champ radio-fréquence dans une direction de l'espace. Ce type de géométrie est dite linéaire. Elle consiste idéalement en quatre électrodes cylindriques à section hyperbolique (voir figure. 2.2). Le champ RF est appliqué sur deux électrodes opposées tandis que les deux autres sont à la masse. Cette géométrie a conduit à la conception du spectromètre de masse et du piège de Paul linéaire. Elle offre les avantages de posséder un meilleur accès optique au centre du piège permettant de plus facilement injecter, manipuler et imager les ions dans le piège. De plus dans un tel piège le nuage d'ions a une forme oblongue ce qui est plus adapté au recouvrement des lasers avec les ions. Finalement, il n'y a pas de micromouvement le long de l'axe du piège. Tout cela étant essentiel pour l'expérience décrite dans cette thèse nous avons décidé de travailler dans un piège linéaire que nous allons décrire dans la suite de ce chapitre.

2.1.4 Piège de Paul linéaire

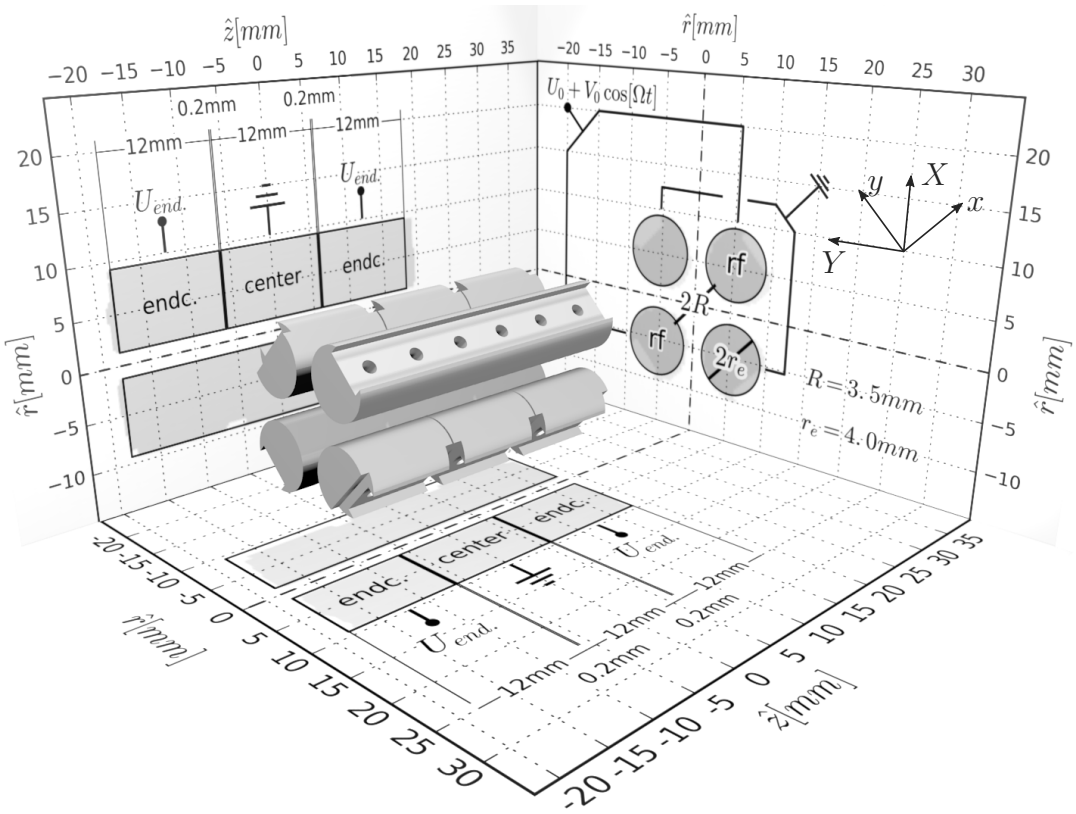

Fig 2.3: *Design du piège de Paul linéaire consistant en 2 électrodes radio-fréquences (rf), 2 électrodes centre (center) et 4 électrodes chapeaux (endc.). Figure prise dans [46].*

Le piège que nous utilisons (fig. 2.3) est donc un piège de Paul linéaire, dans lequel le champ électrique quadrupolaire est généré à l'aide de quatre électrodes cylindriques. Une tension radio-fréquence, $V_{RF} = U_0 + V_0 \cos(\Omega t)$, est appliquée sur deux électrodes opposées (électrodes RF) tandis que les deux autres (électrodes centre) sont à la masse, permettant le confinement dans le plan radial $\boldsymbol{xy}$. Afin de confiner les particules dans la direction $\boldsymbol{z}$ (direction axiale), des électrodes supplémentaires (endcap) sont nécessaires, sur lesquelles on applique une tension continue U_1, créant un potentiel statique le long de l'axe du piège. Le potentiel électrique total du piège quadrupolaire linéaire, Φ, est finalement la somme des potentiels radio-fréquences et statiques :

$$\Phi(x,y,z,t) = \Phi_{RF}(x,y,t) + \Phi_{endcap}(x,y,z) \tag{2.3}$$

Dans l'idéal, la forme des barreaux générant le champ RF quadrupolaire doit épouser la forme des équipotentielles. C'est pourquoi les électrodes devraient être de section hyperbolique. Cependant, pour des raisons de facilité d'usinage, beaucoup de pièges utilisent des barreaux cylindriques, ce qui entraîne des anharmonicités dans le potentiel de piégeage [47]. Dans notre piège, le rapport entre le rayon des

électrodes ($r_e = 4\,\mathrm{mm}$) et la dimension caractéristique du piège ($r_0 = 3{,}5\,\mathrm{mm}$) sont choisis de manière à minimiser ces anharmonicités en respectant la condition $r_e/r_0 = 1{,}1468$ [48]. La distance $2R$ entre les barreaux a elle été choisie afin d'éviter que les électrodes n'écrêtent le faisceau laser infrarouge de spectroscopie, ce qui aurait pour conséquence d'introduire des pertes dans la cavité de spectroscopie (voir section 7.2).

a. Equations de Mathieu et stabilité

On s'intéresse d'abord uniquement au potentiel RF. Au voisinage de l'axe du piège ($x,y \ll r_0$), ce potentiel se met sous la forme suivante :

$$\Phi_{RF}\left(x,y,t\right) = \frac{\left(U_0 + V_0 \cos\left(\Omega t\right)\right)}{2r_0^2}\left(x^2 - y^2 + r_0^2\right). \tag{2.4}$$

où r_0 est une distance effective légèrement différente de la dimension réelle R, car le potentiel n'est pas parfaitement quadrupolaire. On détermine r_0 en modélisant notre piège dans le logiciel SIMION, dans notre cas, on trouve $r_0 = 0{,}9966R$ [46], très proche de R.

Une particule de charge q et de masse m soumise à ce potentiel, subit une force $\boldsymbol{F} = -q\boldsymbol{\nabla}\Phi_{RF}$. La seconde loi de Newton nous permet alors d'écrire les équations du mouvement dans le plan radial :

$$\frac{\mathrm{d}^2x}{\mathrm{d}t^2} - \frac{q}{mr_0^2}\left(U_0 + V_0\cos\left(\Omega t\right)\right)x = 0, \tag{2.5}$$

$$\frac{\mathrm{d}^2y}{\mathrm{d}t^2} + \frac{q}{mr_0^2}\left(U_0 + V_0\cos\left(\Omega t\right)\right)y = 0. \tag{2.6}$$

En définissant de nouveaux paramètres adimensionnés a_x, a_y, q_x et q_y et un temps réduit τ par

$$a_x = -a_y = \frac{4qU_0}{m\Omega^2 r_0^2} \tag{2.7}$$

$$q_x = -q_y = \frac{2qV_0}{m\Omega^2 r_0^2} \tag{2.8}$$

$$\tau = \frac{\Omega t}{2}, \tag{2.9}$$

les équations du mouvement prennent la forme :

$$\frac{\mathrm{d}^2u}{\mathrm{d}\tau^2} + \left(a_u + 2q_u\cos\left(2\tau\right)\right)u = 0, \tag{2.10}$$

où $u = x$ ou y. Chacune de ces équations est une équation de Mathieu [49] possédant des solutions oscillantes (stables) ou divergentes (instables), selon les valeurs des paramètres (a_u,q_u). La trajectoire dans la direction u est stable si (a_u,q_u) appartiennent à la zone de stabilité représentée sur la figure 2.4. Pour confiner physiquement une particule en x et en y, a_u et q_u doivent être dans l'intersection des zones de stabilité en x et en y. On trouve ainsi plusieurs zones de stabilité du piège. Dans la pratique, on travaille uniquement dans la première zone de stabilité (fig. 2.4) (correspondant aux valeurs de q_u les plus faibles) car elle correspond à des tensions RF basses et donc plus facilement accessibles.

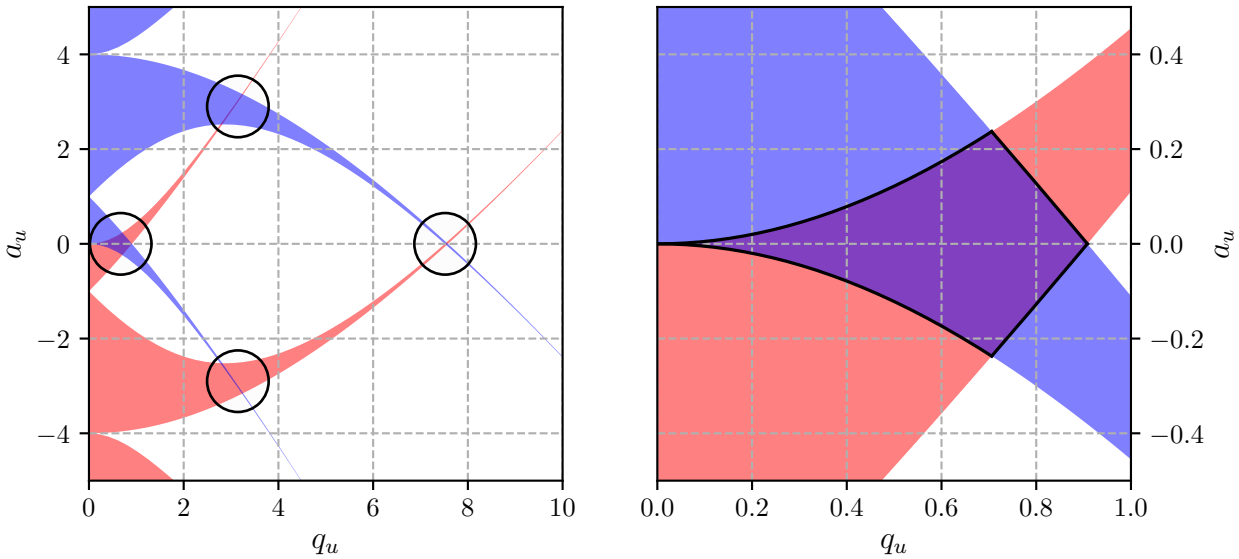

Fig 2.4: *Gauche : Zones de stabilité des équations de Mathieu dans les directions x (bleu) et y (rouge), les cercles noirs représentent les zones de stabilités du piège. Droite : Zoom sur la première zone de stabilité du piège.*

b. Pseudo-potentiel et approximation adiabatique

L'approximation adiabatique consiste à se placer dans un régime où $a_u \ll 1$ et $|q_u|^2 \ll 1$. Dans ce régime on peut montrer [35, 36, 50] que le mouvement radial de la particule dans le piège peut se décomposer en une superposition de deux mouvements périodiques. Un premier de grande amplitude et de faible fréquence (fréquence séculaire), le macromouvement, auquel se superpose un second mouvement rapide de faible amplitude à la fréquence Ω, le micromouvement dont l'amplitude croit avec la distance au centre. Les composantes du mouvement de la particule s'écrivent alors :

$$x(t) \simeq x_0 \cos(\omega_{x,r} t) \left[1 + \frac{q_x}{2} \cos(\Omega t)\right] \tag{2.11}$$

$$y(t) \simeq y_0 \cos(\omega_{y,r} t) \left[1 + \frac{q_y}{2} \cos(\Omega t)\right] \tag{2.12}$$

où les fréquences séculaires $\omega_{x,r}$ et $\omega_{y,r}$ sont données par

$$\omega_{x,r} = \frac{\Omega}{2}\sqrt{\frac{q_x^2}{2} + a_x} \tag{2.13}$$

$$\omega_{y,r} = \frac{\Omega}{2}\sqrt{\frac{q_y^2}{2} + a_y}. \tag{2.14}$$

Dans cette approximation, et en moyennant sur une période du micromouvement, le potentiel de piégeage peut être décrit par un pseudo potentiel qui s'écrit

$$\Phi_{eff}(x,y) = \frac{m}{2q}\left(\omega_{x,r}^2 x^2 + \omega_{y,r}^2 y^2\right). \tag{2.15}$$

Ce potentiel décrit le confinement radial des ions dans le piège. On remarque que pour des particules de même charge, la fréquence séculaire de confinement est d'autant plus importante que la particule est légère (pour $a_u = 0$, $\omega_{u,rf} \propto q_u \propto m^{-1}$). Ainsi, lorsque l'on piège ensemble différentes espèces de même charge, les espèces les plus légères vont se localiser au centre du piège.

c. Confinement dans la direction z

Nous venons de montrer comment le potentiel radio-fréquence permet de confiner les ions dans le plan $\boldsymbol{xy}$. On s'intéresse maintenant au potentiel statique créé par les endcaps. En appliquant une tension U_1 positive sur les électrodes endcaps, il est possible de créer un potentiel confinant sur l'axe $\boldsymbol{z}$ et déconfinant selon les directions $\boldsymbol{x}$ et $\boldsymbol{y}$. Il est donc important que ce potentiel reste faible, afin de ne pas compromettre le confinement radial du champ RF. Au voisinage du centre du piège, ce potentiel s'écrit :

$$\Phi_{endcap}(x,y,z) = \frac{U_1}{2z_{eff}^2}\left(z^2 - \frac{x^2}{2} - \frac{y^2}{2}\right) + U_{centre} \tag{2.16}$$

où z_{eff} est une distance caractéristique de l'ordre de z_0 (distance entre les endcaps). A nouveau, on utilise le logiciel SIMION afin de déterminer $z_{eff} = 11{,}7\,\mathrm{mm}$ et $U_{centre} = 0{,}021\,\mathrm{V}$ [46].

Le mouvement, selon l'axe $\boldsymbol{z}$, d'une particule de charge q dans un tel potentiel est celui d'un oscillateur harmonique à la fréquence $\omega_z = \sqrt{\frac{qU_1}{mz_{eff}^2}}$. On peut réécrire le potentiel sous la forme :

$$\Phi_{endcaps}(x,y,z) = \frac{m}{2q}\omega_z^2\left(z^2 - \frac{x^2}{2} - \frac{y^2}{2}\right). \tag{2.17}$$

Notons que contrairement au potentiel effectif, ce potentiel ne dépend ni de q ni de m. En effet, le produit $\frac{m}{2q}\omega_z^2 = \frac{U_1}{2z_{eff}^2}$ est indépendant de q et m.

d. Potentiel effectif et ordres de grandeurs

A l'aide des résultats des parties précédentes, nous pouvons écrire le potentiel effectif de piégeage, en sommant les équations 2.15 et 2.17,

$$\Phi_{eff}(x,y,z) = \frac{m}{2q}\left((\omega_{x,r}^2 - \frac{1}{2}\omega_z^2)x^2 + (\omega_{y,r}^2 - \frac{1}{2}\omega_z^2)y^2 + \omega_z^2 z^2\right) \tag{2.18}$$

que l'on peut réécrire sous sa forme finale :

$$\Phi_{eff}(x,y,z) = \frac{m}{2q}\left(\omega_x^2 x^2 + \omega_y^2 y^2 + \omega_z^2 z^2\right) \tag{2.19}$$

où les fréquences séculaires prennent les formes

$$\omega_x^2 = \omega_{x,r}^2 - \frac{1}{2}\omega_z^2 = \frac{\Omega^2}{4}\left(\frac{q_x^2}{2} + a_x\right) - \frac{1}{2}\frac{qU_1}{mz_{eff}^2} = \frac{q^2V_0^2}{2m^2\Omega^2 r_0^2} + \frac{qU_0}{2mr_0^2} - \frac{1}{2}\frac{qU_1}{mz_{eff}^2} \tag{2.20}$$

$$\omega_y^2 = \omega_{y,r}^2 - \frac{1}{2}\omega_z^2 = \frac{\Omega^2}{4}\left(\frac{q_y^2}{2} + a_y\right) - \frac{1}{2}\frac{qU_1}{mz_{eff}^2} = \frac{q^2V_0^2}{2m^2\Omega^2 r_0^2} - \frac{qU_0}{2mr_0^2} - \frac{1}{2}\frac{qU_1}{mz_{eff}^2} \tag{2.21}$$

$$\omega_z^2 = \frac{qU_1}{mz_{eff}^2}. \tag{2.22}$$

Le tableau 2.1 donne les valeurs de a_x, q_x et des fréquences séculaires pour différentes configurations du piège.

Espèces	V_0	$a_x = -a_y$	$q_x = -q_y$	$\omega_x/2\pi$[kHz]	$\omega_y/2\pi$[kHz]	$\omega_z/2\pi$[kHz]
H_2^+	200 V	$2{,}27\,10^{-3}$	0,227	1105	1010	211
Be^+	200 V	$5{,}04\,10^{-4}$	0,050	271	170	99,6
H_2^+	500 V	$2{,}27\,10^{-3}$	0,567	2689	2651	211
Be^+	500 V	$5{,}04\,10^{-4}$	0,126	609	571	99,6

Tableau 2.1: *Paramètres a_u, q_u et fréquences séculaires pour les deux espèces dans notre piège pour différentes tensions RF, $\Omega/2\pi = 13{,}335$ MHz, $U_0 = 1$ V and $U_1 = 5$ V.*

e. Profondeur de piégeage et température des ions

Une grandeur directement liée à la fréquence de piégeage est la profondeur de piégeage. Elle permet de définir la température maximale qu'un ion peut posséder tout en étant piégé sans source de refroidissement. Le pseudo-potentiel vu

précédemment s'étend sur une distance R, en prenant $U_0 = 0$ on a $\omega_x = \omega_y = \omega_r$ et la profondeur de piégeage radiale U_{depth} s'écrit :

$$U_{depth} = \frac{1}{2} m \omega_r^2 R^2. \tag{2.23}$$

Cette profondeur permet d'estimer la température maximale des ions dans le piège, qui s'écrit :

$$T_{max} = \frac{m \omega_r^2 R^2}{k_B} \tag{2.24}$$

où k_B est la constante de Boltzmann. Pour le Be^+ on a, en ordre de grandeur, $\omega_r \sim$ 500 kHz, on trouve alors une profondeur de piégeage de 5,6 eV et une température maximale de $T_{max} \sim 130\,000$ K. Cette température maximale donne une idée de la distribution de vitesse et la profondeur de piégeage donne la vitesse maximale qui peut être piégée. En pratique le piège se remplit à 1/10 de sa profondeur. Sans refroidissement, la température des ions dans le piège est donc de l'ordre de $T \sim 13\,000$ K.

f. Forme du nuage

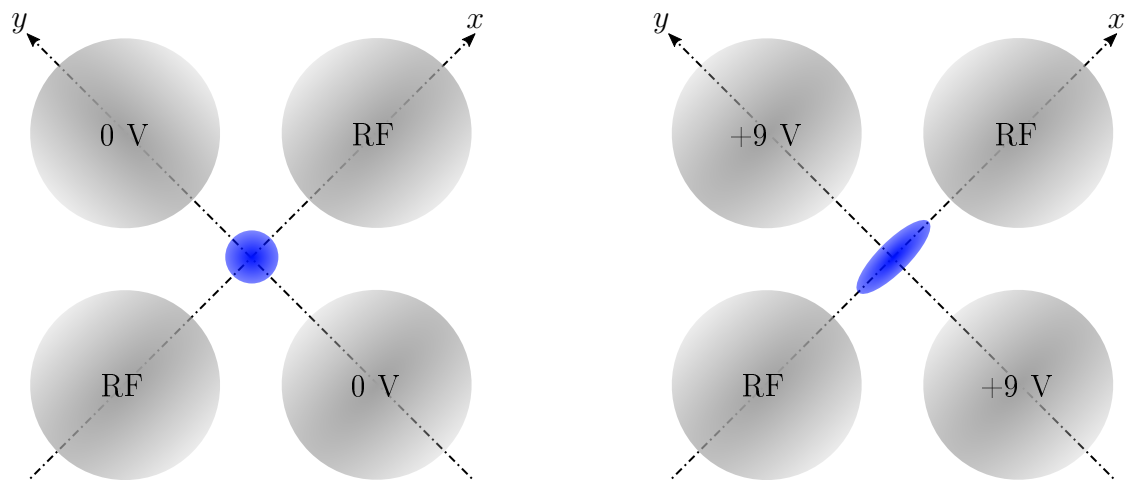

Fig 2.5: *Schéma simplifié du piège et du nuage d'ions. En modifiant la tension U_0 des électrodes DC il est possible d'aplatir le nuage d'ions. Les électrodes endcaps ne sont pas représentées.*

La forme du nuage d'ions dans le piège dépend du nombre d'ions ainsi que du potentiel. Les équations 2.20 et 2.21 montrent qu'en jouant sur U_0 il est possible d'augmenter le confinement dans une des directions radiales et de le diminuer dans l'autre permettant ainsi de passer d'un nuage rond à un nuage aplati représenté sur la figure 2.5. Si le nombre d'ions n'est pas trop élevé il est possible d'obtenir ainsi un nuage plat purement 2D. Nous verrons dans la partie 6.6 comment cette configuration de nuage plat nous permet de compter précisément le nombre d'ions dans le piège.

2.1.5 Fonctionnement du piège

Afin de faire fonctionner le piège, il est important de pouvoir appliquer et contrôler précisément les tensions évoquées dans la partie précédente.

La tension RF est générée à l'aide d'un module FPGA (modèle RedPitaya), que l'on utilise comme un générateur de fréquence. Il est contrôlé via l'ordinateur de l'expérience à l'aide du logiciel Python. La sortie du RedPitaya est connectée à un amplificateur RF (de la marque RFPA) délivrant jusqu'à 20 W en sortie. Cela correspond à une amplitude RF d'environ 30 V sur 50 Ω d'impédance. Cette amplitude est trop faible pour piéger des ions. Afin de contourner ce problème, on utilise le fait que l'impédance du piège est capacitive, ainsi en utilisant un transformateur élévateur résonant il est possible de faire fonctionner le piège avec une tension RF de forte amplitude. Pour cela la RF est envoyée dans l'enceinte à vide principale (voir section 2.2) via un résonateur hélicoïdal [51] (voir figure 2.6) permettant d'obtenir des tensions allant jusqu'à 540 V. La tension RF est couplée capacitivement aux électrodes RF via un fil en cuivre de diamètre 1 mm. Les condensateurs C_1 et C_2 forment un pont diviseur de tension permettant de mesurer la tension RF appliquée sur les électrodes. Le condensateur C_{add} permet d'ajuster la fréquence de résonance pour optimiser q_x et q_y. Nous avons choisi comme fréquence RF : $\Omega/2\pi = 13{,}35\,\mathrm{MHz}$. Pour plus de détails sur cette électronique, se référer à la thèse de J.Heinrich [46].

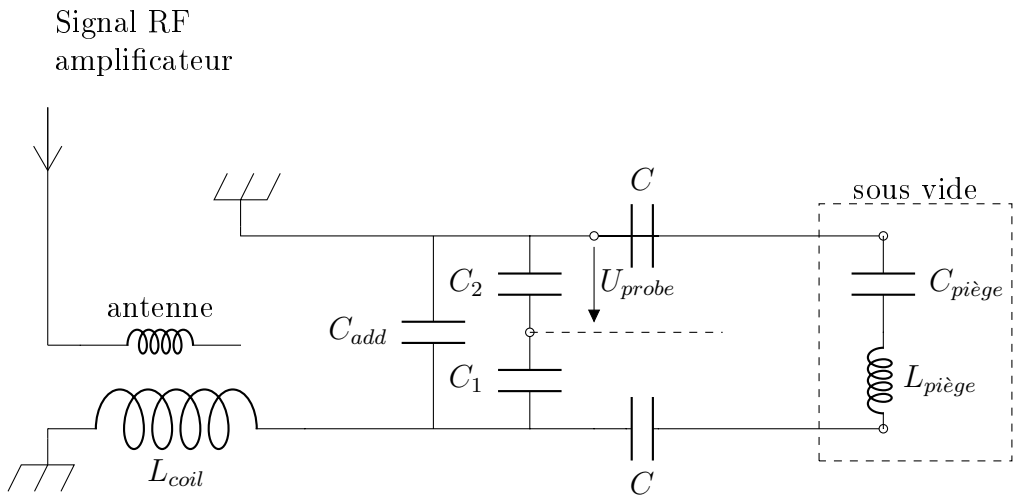

Fig 2.6: *Schéma électrique du couplage capacitif de la RF sous vide.* $C_1 = 1{,}8\,\mathrm{pF}$, $C_2 = 18\,\mathrm{pF}$, $C = 10\,\mathrm{nF}$, $C_{add} = 54\,\mathrm{pF}$, $L_{coil} = 1{,}63\,\mu\mathrm{H}$, $C_{piège} = 20{,}6\,\mathrm{pF}$.

Les tensions continues sont générées à l'aide d'une carte DAC de la marque National Instrument (modèle NI PCI6703 DAC) contrôlée elle aussi via l'ordinateur. Elle permet de délivrer des tensions entre −10 V et 10 V. Le raccordement à l'enceinte à vide se fait via une bride DB15. Afin d'éviter le pick-up RF sur les électrodes DC, celles-ci sont filtrées à l'aide d'un circuit passe-bas RC directement connecté aux électrodes et montrée sur la figure 2.7. En prenant $R = 100\,\mathrm{k\Omega}$ et $C = 1\,\mathrm{nF}$, on obtient une fréquence de coupure du filtre de $f_c = 1{,}6\,\mathrm{kHz}$, ce qui

permet de filtrer très efficacement la RF à $\Omega/2\pi = 13{,}35\,\mathrm{MHz}$, mais ne permet pas de modifier rapidement les tensions DC.

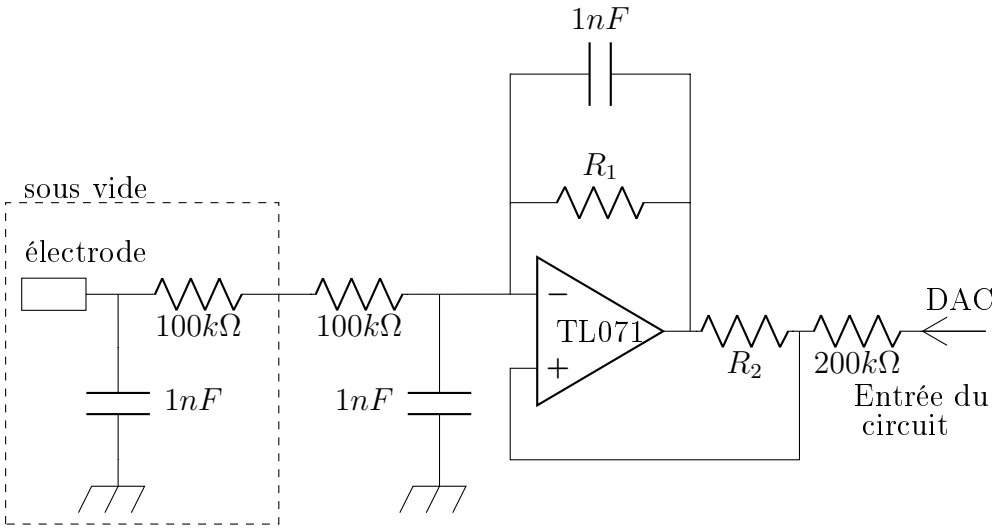

Fig 2.7: *Schéma électrique du branchement des électrodes sous vide et du circuit de compensation. Pour les électrodes DC $R_1 = R_2 = 12\,\mathrm{k}\Omega$, pour les électrodes RF $R_1 = R_2 = 100\,\mathrm{k}\Omega$. Le rôle des condensateurs est d'assurer la stabilité du circuit. L'encadré en pointillé montre le circuit RC de filtrage sous vide. Notons que l'entrée du circuit où on applique le signal est la sortie de l'amplificateur opérationnel.*

Lors du chargement des ions par impact électronique (voir section 2.3), les électrons provenant du canon induisent un courant dans les électrodes, ce qui a pour conséquence de changer les tensions aux bornes des électrodes et donc de possiblement rendre le piège instable lors du chargement des ions. Afin de remédier à ce problème, une électronique dite de compensation (voir figure 2.7) est ajoutée en dehors du vide. Pour plus de détails sur cette électronique, se référer à la thèse de J.Heinrich [46].

2.2 L'enceinte à vide principale

L'expérience que nous tentons de réaliser consiste à piéger et manipuler un nombre très faible de particules. Il est donc nécessaire de travailler dans un environnement ultra vide (UHV), dans lequel la pression est inférieure à 10^{-9} mbar afin de minimiser les collisions dans le piège et donc les pertes d'ions. De plus, il est nécessaire de pouvoir illuminer les ions à l'aide de différents lasers. C'est pourquoi l'enceinte principale dans lequel se trouve le piège possède des axes optiques permettant d'y faire pénétrer les différents lasers. Nous allons décrire dans cette partie l'enceinte à vide principale.

Cette enceinte est présentée figure 2.8 (a). Elle est réalisée en titane (le titane a été choisi pour ses propriétés amagnétiques) et de forme cylindrique, de diamètre intérieur $d_{in} = 30\,\mathrm{cm}$, de diamètre extérieur $d_{ext} = 36\,\mathrm{cm}$ et de hauteur $h = 10\,\mathrm{cm}$.

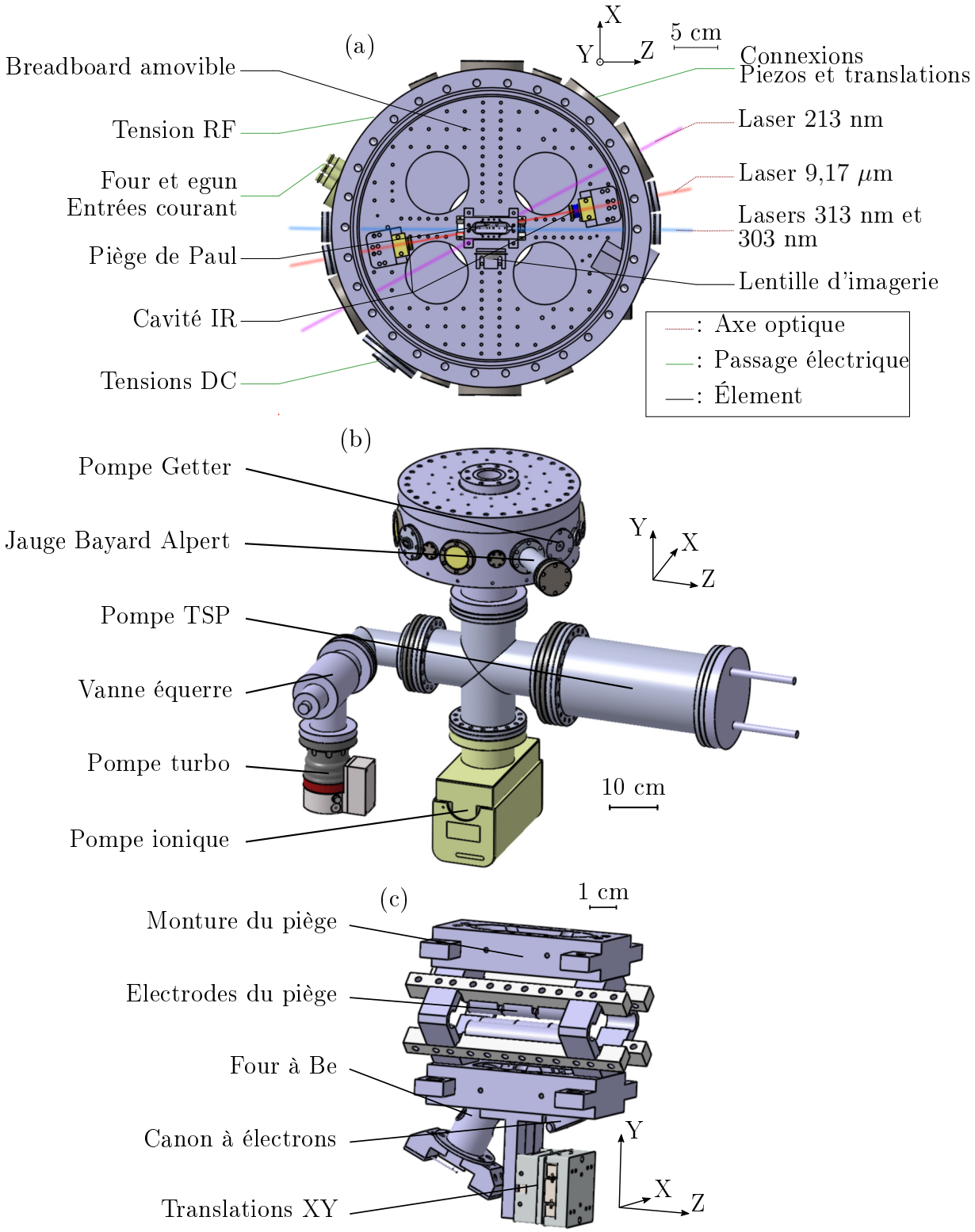

Fig 2.8: *Schémas de l'enceinte principale. En (a), vue détaillée de l'intérieur de l'enceinte. En (b), vue de l'ensemble du système de pompage. Pompe TSP : pompe à sublimation de titane. En (c), vue détaillé du piège linéaire monté sur une translation XY, du four à béryllium et du canon à électrons.*

Le diamètre de l'enceinte a été choisi afin de pouvoir y placer une cavité Fabry-Perot nécessaire à la spectroscopie des ions H_2^+ (voir section 7.2).

Deux fenêtres CF16 le long de l'axe $\boldsymbol{Z}$ du piège permettent d'injecter le laser de refroidissement à 313 nm (voir chapitre 5) et le laser de photo-ionisation (voir chapitre 3) à 303 nm. Deux autres fenêtres CF16 définissent l'axe optique du laser de spectroscopie (voir section 7.1) à 9,17 μm faisant un angle de 11,5 ° avec l'axe du piège. Enfin, deux fenêtres CF40 définissent l'axe optique du laser de photo-dissociation à 213 nm (voir section 7.2) faisant un angle de 28,5 ° avec l'axe du piège. Une fenêtre CF40 le long de l'axe $\boldsymbol{X}$ et une fenêtre le long de l'axe $\boldsymbol{Y}$ permettent d'imager les ions au centre du piège et ainsi d'observer des cristaux de Coulomb et de compter les ions (voir chapitre 6). Afin d'éviter les pertes par réflexion ou les réflexions parasites, toutes les fenêtres précédemment introduites sont traitées anti-reflet aux longueurs d'ondes adéquates.

Le piège est représenté figure 2.8(c), il se situe au centre de l'enceinte, il est monté sur un système de deux translations amagnétiques et compatibles ultra vide de la marque Noliac (modèle SLC-1720-O20-W-UHV-NM) permettant de déplacer le piège selon les axes $\boldsymbol{X}$ et $\boldsymbol{Y}$ afin de faire coïncider les ions avec le mode de la cavité Fabry-Perot de spectroscopie pour maximiser l'interaction avec le laser et donc le signal de spectroscopie. Sous le piège se trouve un four à béryllium ainsi qu'un canon à électrons permettant de créer les ions Be^+ (voir section 2.3).

Afin d'atteindre un vide $< 10^{-9}$ mbar, l'intégralité des éléments placés dans l'enceinte sont préalablement nettoyés, dans un bain à ultrason, à l'éthanol et à l'acétone. Une fois refermée, l'enceinte est étuvée à 120 °C pendant 10 jours, afin de dégazer les molécules d'eau adhérant aux matériaux. Lors de l'étuvage, le tout est pompé à l'aide d'une pompe turbomoléculaire (voir figure 2.8(b)) et en fin d'étuvage par une pompe ionique. Une fois l'étuvage terminé, la pompe turbomoléculaire est arrêtée et dissociée de l'enceinte, par l'intermédiaire d'une vanne équerre tout métal. Ensuite une pompe à sublimation de titane (TSP) et une pompe getter renforcent la pompe ionique. La pression dans l'enceinte est mesurée à l'aide d'une jauge de pression Bayard-Alpert. Nous avons atteint une pression de $6{,}0\,10^{-11}$ mbar selon la jauge Bayard-Alpert compte tenu du coefficient 2 pour le gaz résiduel H_2. Lorsqu'on éteint la jauge Bayard-Alpert, le courant de la pompe ionique diminue d'environ un facteur 2, ce qui signifie qu'en réalité la pression est $< 6{,}0.10^{-11}$ mbar. Elle descend à $6{,}0.10^{-12}$ mbar d'après la lecture de pression de la pompe ionique.

2.3 Création d'ions Be^+

Le potentiel RF du piège rend le chargement d'ions depuis l'extérieur très difficile. Une méthode simple, afin de contourner ce problème, consiste à créer les ions directement dans le piège (*in situ*). Pour cela, on envoie un jet d'atomes dans le piège, que l'on ionise ensuite soit par impact électronique à l'aide d'un canon à électrons, soit par photo-ionisation à l'aide d'un laser. Dans cette partie nous décrirons en

premier lieu le four à béryllium permettant de créer le jet effusif de Be, puis nous parlerons du canon à électrons permettant l'ionisation par impact électronique, et pour finir nous verrons la photo-ionisation en donnant quelques résultats.

2.3.1 Four à béryllium

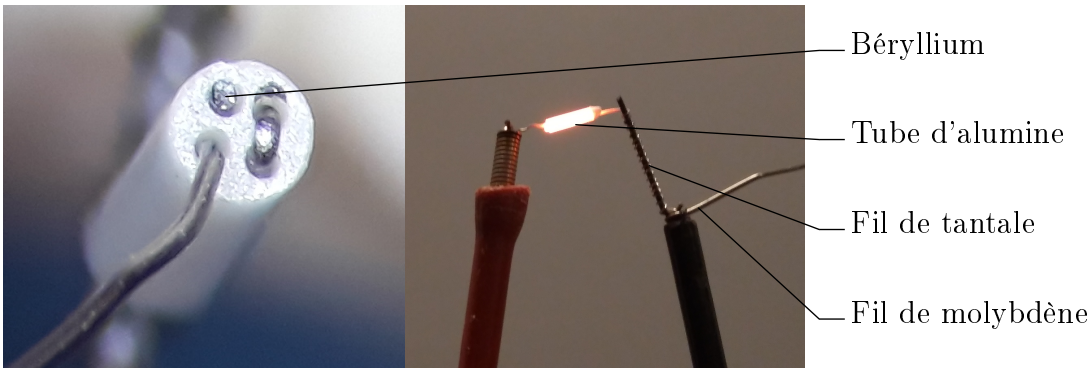

Fig 2.9: *Gauche : photo du tube d'alumine dans lequel passe le fil de tantale et se trouve le béryllium. Droite : photo du four chauffé par* 2,5 A *dans l'air.*

Le design du four a été réalisé au NIST par P.O. Schmidt et T. Rosenband. Il consiste en un tube d'oxyde d'aluminium (alumine) de diamètre 1,2 mm et de longueur 5 mm comprenant 4 trous de diamètre 254 μm. Dans trois de ces trous, on passe un fil de tantale de diamètre 150 μm permettant de chauffer le tube par effet Joule. Dans le quatrième trou, on place un fil de béryllium de diamètre 250 μm et de longueur 6 mm maintenu grâce à un point de colle céramique (Ceramabond 569). On utilise une colle céramique car elle a l'avantage de très peu dégazer et de supporter de très hautes températures. Une extrémité du fil de tantale est ensuite enroulée autour d'un fil de molybdène de diamètre 500 μm puis soudée par point à ce fil. L'autre extrémité est pincée dans la monture du four, qui est branchée à la masse. Le tout est fixé sous le piège.

En faisant circuler environ 2,9 A dans le fil de tantale, on chauffe assez le béryllium ($\sim$ 1000 K) pour voir des ions dans le piège (après ionisation). Lorsqu'on allume le four à froid, il lui faut environ 5 s avant d'atteindre sa température d'équilibre, ainsi lorsqu'on répète des séquences de chargement/mesure, et afin d'éviter un temps mort dû à la thermalisation du four, ce dernier est maintenu à un courant dit de stand-by (entre 2,5 A et 2,8 A) en dehors des phases de chargement afin de rester à température.

2.3.2 Canon à électrons

Le canon à électrons que nous utilisons est un modèle commercial de la marque Kimball (modèle FRA-2X1-2). Il est monté proche du piège (voir figure 2.8) et fait un angle d'environ 45° avec le four. L'énergie du faisceau peut être ajustée entre 5 et

1000 eV. Le courant du faisceau est ajustable entre 5 nA et 400 μA. Le filament du canon est alimenté par une source de courant de la marque Keithley. Les tensions sur le filament et sur le cylindre Wehnelt sont appliquées à l'aide d'une source de tension faite maison.

Pendant le chargement le canon à électrons est allumé en même temps que le four à Be et reste allumé pendant tout le temps de chargement. On travaille généralement avec les paramètres suivants :

- Courant du four : 1,49 A
- Tension du filament : −145 V
- Tension du Wehnelt : −140 V

Avec ces paramètres, on charge quelques centaines d'ions en 30 s. L'ionisation par impact électronique est une méthode relativement peu chère, efficace et facile à implémenter. Néanmoins elle a plusieurs désavantages, particulièrement le fait que l'utilisation du canon à électrons va déposer des charges sur les défauts isolants des électrodes. Ces effets nous obligent à régulièrement modifier les tensions de compensations de l'excès de micromouvement des ions dans le piège (voir section 6.5) lors de l'utilisation fréquente du canon à électrons.

2.3.3 Photo-ionisation du béryllium

La démonstration d'une méthode originale de photo-ionisation résonante à 2 photons [52] a été une étape importante dans la création et le chargement d'ions dans un piège. Elle permet de s'affranchir des problèmes liés à l'utilisation d'un canon à électrons.

Le béryllium peut être photo-ionisé de manière résonante à 235 nm [53], la source laser consiste à générer le quatrième harmonique d'un laser Ti:Saphir à 940 nm en continu ou en impulsion. La méthode avec un laser continu a l'avantage d'être résonante mais finalement peu efficace car la largeur Doppler est très supérieure à celle du laser. La méthode avec un laser ns pulsé est plus efficace car la largeur du laser est alors comparable à la largeur Doppler et de plus la génération du quatrième harmonique est plus aisée. Dans les deux cas, un premier photon résonant va exciter la transition $[1s^2 2s^2]\ {}^1S_0 \leftrightarrow [1s^2 2s2p]\ {}^1P_1$ proche de 235 nm de l'atome de Be et le deuxième photon va exciter l'atome dans le continuum et l'ioniser (voir figure 2.10). Cette méthode semble très efficace et permet de s'affranchir du canon à électrons. Elle est néanmoins plus couteuse, car elle demande une source laser pulsée à 940 nm ainsi que deux modules de doublage de fréquence.

Nous n'avons pas à notre disposition les moyens de réaliser une telle source. Néanmoins, nous avons un laser à 213 nm que nous utilisons pour la photo-dissociation des ions H_2^+ (voir section 4). C'est un laser pulsé commercial de la marque Xiton Photonics (modèle Impress 213) qui utilise la génération du cinquième harmonique

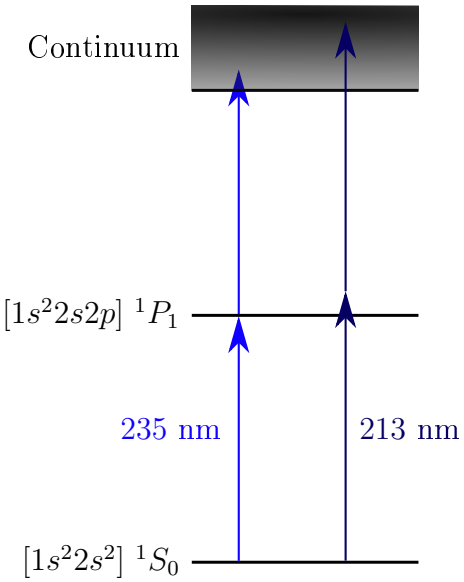

Fig 2.10: *Diagramme d'énergie et transitions pour la photo-ionisation résonante à* 235 nm *et non résonante à* 213 nm *de l'atome de béryllium.*

d'un laser pulsé Nd:YVO4 à 1064 nm pompé par une diode laser. Le laser peut délivrer des impulsions d'énergie $\sim 15\,\mu$J et de durée $\sim 6{,}6$ ns avec une fréquence de répétition de $f_{rep} = 7 - 12{,}5$ kHz. En sortie du laser le faisceau a un waist de $\sim 135\,\mu$m et un facteur de qualité $M^2 = 1{,}3$.

Afin de déterminer s'il est pertinent d'utiliser ce laser pour ioniser le Be, nous allons estimer un ordre de grandeur du taux de photo-ionisation (nombre d'ions/seconde) attendu. On trouve dans la littérature [54, 55] des calculs de la section efficace de photo-ionisation à 2 photons du béryllium. Un ordre de grandeur à 213 nm est $\sigma_{213} \sim 3{,}5\,10^{-49}\,\mathrm{cm}^4\mathrm{s}$. Dans le cas non-résonant, par définition de la section efficace et du fait que l'ionisation est un processus à 2 photons, on peut écrire la probabilité β pour un atome d'absorber 2 photons pendant une impulsion de durée $\tau = 6{,}6$ ns sous la forme

$$\beta = 1 - e^{-\sigma_{213}(\Phi_\gamma)^2\tau} \tag{2.25}$$

où Φ_γ est le flux moyen de photons dans la surface du faisceau laser au niveau de l'atome. Dans le cas où $\sigma_{213}\,(\Phi_\gamma)^2\,\tau \ll 1$, hypothèse que l'on pourra vérifier par la suite, on peut réécrire la probabilité d'absorption :

$$\beta = 1 - e^{-\sigma_{213}(\Phi_\gamma)^2\tau} \sim \sigma_{213}\,(\Phi_\gamma)^2\,\tau. \tag{2.26}$$

Le flux moyen peut se mettre sous la forme,

$$\Phi_\gamma = \frac{I_{pulse}}{\left(\frac{hc}{\lambda}\right)} \tag{2.27}$$

où I_{pulse} est l'intensité de l'impulsion. Pour un faisceau gaussien de rayon $w(z) = w_0\sqrt{1 + (z/z_R)^2}$ où w_0 est le waist du faisceau, $z_R = \frac{\pi w_0^2}{\lambda}$ la longueur de Rayleigh

et z la position le long de l'axe de propagation du faisceau, et pour un atome se situant à une distance r de l'axe de propagation, l'intensité s'écrit :

$$I_{pulse} = I_0 e^{-2\frac{r^2}{w^2(z)}} \tag{2.28}$$

La puissance totale dans une impulsion est alors :

$$P_{pulse} = \int_0^\infty I_{pulse}(r) 2\pi r \mathrm{d}r = \frac{\pi I_0 w^2(z)}{2} \tag{2.29}$$

d'où,

$$I_0 = \frac{2P_{pulse}}{\pi w^2(z)} = \frac{2E_{pulse}}{\pi w^2(z)\tau} \tag{2.30}$$

où E_{pulse} est l'énergie d'une impulsion. On a considéré ici que l'impulsion est rectangulaire temporellement. En utilisant les équations 2.30, 2.28 et 2.27, on peut mettre l'équation 2.26 sous la forme :

$$\beta(r,z) = \sigma_{213} \left(\frac{\lambda}{hc}\right)^2 \left(\frac{2E_{pulse} e^{-2\frac{r^2}{w^2(z)}}}{\pi w^2(z)}\right)^2 \frac{1}{\tau} \tag{2.31}$$

Pour $w_0 \sim 70\,\mu$m et $E_{pulse} = 10\,\mu$J on a $\beta(0,0) \sim 10^{-6}$. L'hypothèse $\sigma_{213}\left(\Phi_\gamma\right)^2 \tau \ll 1$ est donc justifiée.

Connaissant la probabilité pour un atome d'absorber 2 photons, il faut maintenant estimer la densité d'atome de Be dans le piège. Elle dépend de la température du four et on fait l'hypothèse que la densité est homogène. L'équation de la pression de vapeur saturante du Be en fonction de la température [56] permet d'écrire la densité d'atomes en atomes/m^3 :

$$\rho_{Be} = \frac{10^{13{,}048 - \frac{17020}{T} - 0{,}4440 \log_{10}(T)}}{k_B T} \tag{2.32}$$

où $k_B = 1{,}38\,10^{-23}$ J.K^{-1} est la constante de Boltzmann. On peut finalement écrire le taux de photo-ionisation :

$$\Gamma = f_{rep} \int_0^\infty \int_0^{2\pi} \int_{-z_c/2}^{z_c/2} \sigma_{213} \left(\frac{\lambda}{hc}\right)^2 \left(\frac{2E_{pulse} e^{-2\frac{r^2}{w^2(z)}}}{\pi w^2(z)}\right)^2 \frac{1}{\tau} \rho_{Be} r\, dr\, d\theta\, dz \tag{2.33}$$

où $z_c \sim 1$ mm est une longueur caractéristique du recouvrement entre le faisceau et le jet d'atomes.

On estime la température du four entre 900 K et 1050 K. La figure 2.11 donne le taux de photo-ionisation en fonction de la température du four en prenant, $w_0 = 70\,\mu$m et $E_{pulse} = 10\,\mu$J. L'intégrale est calculée numériquement avec Python. On rappelle que c'est un calcul d'ordre de grandeur, en aucun cas nous n'essayerons de comparer ce résultat aux résultats expérimentaux. Néanmoins, la théorie donne un taux de création de 1 à 30/s et semble indiquer qu'il est possible de remplir le piège dans une limite de temps acceptable pour l'expérience. Nous avons donc tenté de créer des ions avec ce laser.

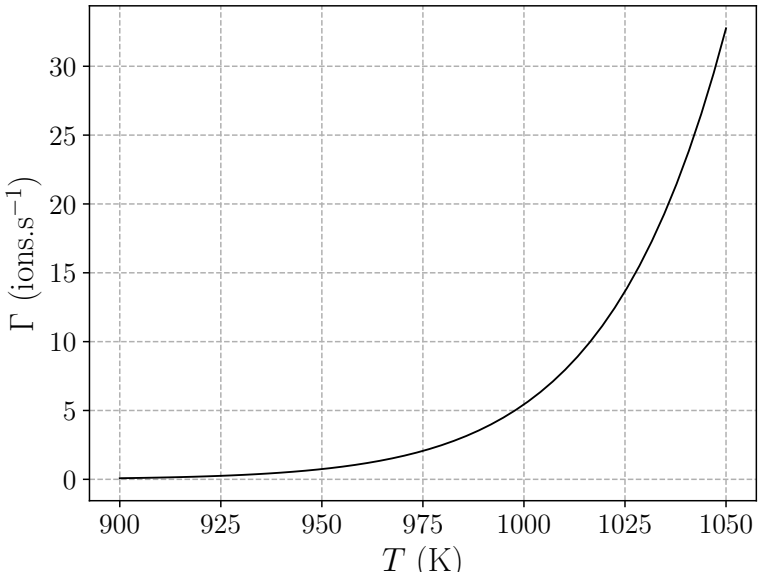

Fig 2.11: *Taux de photo-ioniation théorique du Be à* 213 nm *en fonction de la température du four.*

En pratique on utilise deux lentilles de focales respectives $f_1 = 500\,\mathrm{mm}$ et $f_2 = 200\,\mathrm{mm}$ placées de manière à focaliser le faisceau au centre du piège avec un waist $w_0 \sim 73\,\mu\mathrm{m}$. Une fois le faisceau centré, nous avons procédé au chargement d'ions dans le piège. Pour cela, le laser de photo-ionisation est allumé en même temps que le four pendant une certaine durée. Lors du chargement, le laser de refroidissement des ions Be^+ à 313 nm (voir chapitre 5) est aussi allumé. Une fois le chargement terminé, le laser de photo-ionisation et le four sont éteints, le laser de refroidissement lui reste allumé, les ions Be^+ sont alors refroidis et on observe leur fluorescence à l'aide du système d'imagerie et d'une caméra EMCCD (voir section 6.2). Lors de cette expérience nous avons vu une ou plusieurs autres espèces plus lourdes que le Be^+ présentes dans le piège. Ces espèces sont la résultante de la photo-ionisation par le laser à 213 nm d'une, ou de plusieurs, autres espèces atomiques, ou moléculaires, plus lourdes, provenant du four. De manière générale, après le chargement, ces espèces sont expulsées du piège à l'aide d'une procédure de nettoyage (voir section 6.4) afin de ne garder que les ions Be^+.

Une fois les premiers ions observés et les paramètres ajustés afin d'optimiser le chargement, nous avons voulu mesurer le taux de création d'ions en fonction de la puissance moyenne du laser afin de valider la nature de la photo-ionisation du Be à 213 nm comme processus à deux photons. L'expérience consiste à se placer dans la configuration de piégeage symétrique n°1 définie par : $V_0 = 500\,\mathrm{V}$, $\Omega/2\pi = 13{,}3\,\mathrm{MHz}$, $U_0 = 0\,\mathrm{V}$ et $U_1 = 8\,\mathrm{V}$. Le four est à 2,9 A pendant le chargement et le stand-by est à 2,8 A. Pour chaque valeur de la puissance moyenne du laser, on mesure le nombre d'ions créés (pour la mesure du nombre d'ions, voir section 6.6) en fonction du temps de création. Pour chaque temps de création, l'expérience est répétée 10 fois, on réalise ensuite un ajustement linéaire par la méthode des moindres carrés afin d'en déduire, pour une puissance donnée, un taux de photo-ionisation. L'expérience

est ensuite répétée pour différentes valeurs de puissances du laser à 213 nm. Cela permet d'obtenir les résultats de la figure 2.12 à gauche.

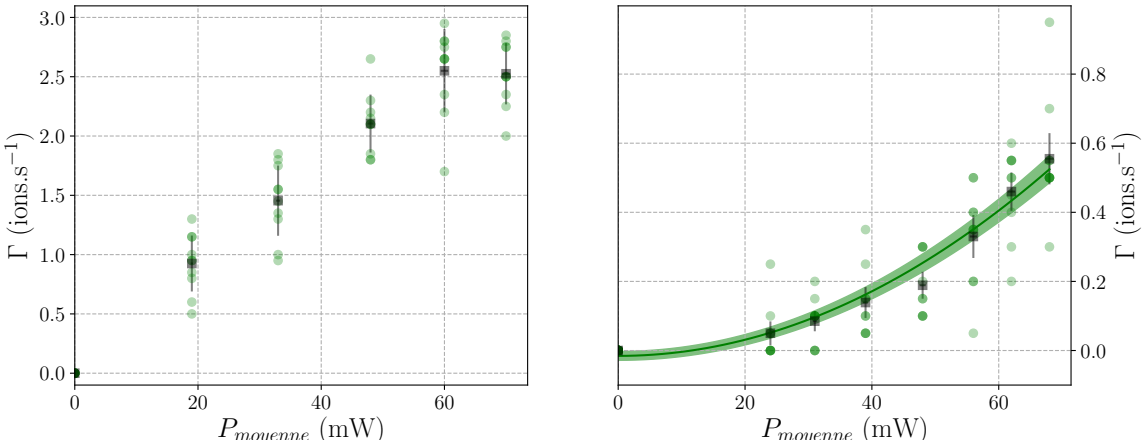

Fig 2.12: *Taux de photo-ionisation du Be en fonction de la puissance du laser à* 213 nm. *Gauche : le piège est dans la configuration n°1 lors du chargement. Droite : le piège est dans la configuration n°2 lors du chargement.*

Ces premiers résultats sont assez surprenants. On observe une forme de saturation du taux de création pour les grandes puissances ce qui est exclu par la théorie (voir équation 2.33). Si on sature la première transition $[1s^2 2s^2]\ ^1S_0 \leftrightarrow [1s^2 2s2p]\ ^1P_1$, on s'attend à une dépendance linéaire caractéristique de la deuxième étape d'excitation non-résonnante dans le continuum. Néanmoins la théorie est formelle, dans notre cas on ne peut pas saturer la première transition, on s'attend donc à une dépendance quadratique du taux de photo-ionisation en fonction de la puissance du laser.

Une hypothèse permettant d'expliquer ce résultat consiste à considérer non pas une saturation de la photo-ionisation, mais une saturation du remplissage du piège. En effet nous avons vu précédemment que lors du chargement des ions, on ne crée pas uniquement des ions Be^+, et bien que les autres ions créés soient expulsés du piège après le chargement, ils peuvent limiter la quantité d'ions Be^+ que l'on piège lors du chargement du fait de leur présence. Afin de valider cette hypothèse, nous avons modifié la configuration du piège lors du chargement. L'idée est de se placer dans le diagramme de stabilité du piège en un point où les espèces plus lourdes que le Be^+ ne sont pas piégées (c'est ce même principe que l'on utilise pour nettoyer le piège, et dont on discutera plus en détails dans la section 6.4). Le piège est dans la configuration asymétrique n°2 définie par : $V_0 = 500$ V, $\Omega/2\pi = 13{,}3$ MHz , $U_0 = 15$ V et $U_1 = 8$ V. Dans cette situation, on est assez proche de la zone d'instabilité du Be^+, ce qui rend le chargement beaucoup moins efficace. Nous avons donc monté le four à 3,1 A, le stand-by lui est toujours à 2,8 A. On fait ensuite les mêmes mesures que précédemment, et on obtient les résultats de la figure 2.12 à droite. Lors de l'expérience on observe une absence d'ions lourd lors du chargement. De plus le nombre d'ions produits est compatible avec une loi quadratique. Afin de charger le piège le plus rapidement possible il est toutefois

nécessaire de se placer dans la configuration n°1 afin d'atteindre le taux de photo-ionisation maximal observé de $\Gamma \sim 2{,}5\,\text{ions.s}^{-1}$.

In fine, si on compare le chargement d'ions avec le canon à électrons et avec le laser à 213 nm, on trouve des taux de chargement relativement proches. Par contre, l'utilisation du laser n'entraîne pas une modification des tensions de compensation, même après plusieurs jours d'utilisation. Il est donc plus commode de travailler avec le laser à 213 nm.

2.4 Conclusion

Nous avons un piège linéaire fonctionnel dans lequel nous sommes capables de créer des ions Be^+ qui, une fois refroidis, permettront de refroidir sympathiquement les ions H_2^+. L'ensemble des appareils sont contrôlés à partir d'un ordinateur à l'aide d'un logiciel écrit en Python que nous avons développé. Nous sommes ainsi capable de créer et de piéger des ions de manière automatisée et reproductible. La performance du système de pompage permet d'obtenir un excellent vide de l'ordre de 10^{-11} mbar et par conséquent une durée de vie des ions Be^+ dans le piège de plusieurs heures. Finalement, le piège peut être translaté sous-vide ce qui nous permettra d'optimiser le signal de spectroscopie en faisant coïncider les ions H_2^+ avec le mode de la cavité de spectroscopie.

Chapitre 3

Création d'ions H_2^+

Le but de l'expérience étant de réaliser la spectroscopie d'ions H_2^+ refroidis sympathiquement par l'intermédiaire d'ions Be^+, il est nécessaire de pouvoir créer et piéger ces ions H_2^+ dans le piège linéaire sans compromettre le vide dans l'enceinte principale. Une méthode consiste à ioniser un jet moléculaire d'H_2 traversant le piège (création in-situ). Une autre méthode consiste à créer les ions H_2^+ en dehors du piège (création ex-situ) puis à les transporter et à les injecter dans le piège à l'aide d'éléments d'optique ionique. La méthode ex-situ permet certainement de plus facilement maintenir le vide dans l'enceinte du piège mais est plus compliquée à mettre en œuvre. Elle est utilisée lorsque que la création in-situ est impossible, par exemple lors de la création d'ions multi-chargés provenant d'une source particulière [57] ou encore la création d'ions d'antimatière $\overline{H}^+$ dont la création et le piégeage est une étape phare du projet GBAR (voir chapitre 1). Dans notre cas il est facile de créer les ions H_2^+ in-situ en ionisant des molécules d'H_2, c'est pourquoi nous avons choisi cette méthode. La méthode d'ionisation la plus simple est l'ionisation par impact électronique à l'aide d'un canon à électrons. Bien que facile et peu couteuse à mettre en œuvre elle a un principal défaut, celui de produire des ions dans une distribution d'états ro-vibrationnels avec seulement $\sim 1\,\%$ d'ions dans l'état qui nous intéresse pour la spectroscopie, c'est-à-dire l'état $v = 0, L = 2$, ce qui a pour conséquence de limiter énormément le rapport signal à bruit du signal de spectroscopie.

La préparation d'ions moléculaires dans un état unique est aujourd'hui une condition nécessaire pour toute expérience de spectroscopie à haute résolution. Pour les molécules diatomiques hétéronucléaires (l'ion HD^+ par exemple), le refroidissement laser rotationnel [58] et le pompage optique [14] de transitions ro-vibrationnelles peuvent être utilisés à cette fin. Ces méthodes ne fonctionnent pas dans le cas de molécules diatomiques homonucléaires (les ions H_2^+, D_2^+ ou N_2^+ par exemple) à cause de l'absence de transitions dipolaires électriques. S. Schiller et al. ont réalisé des calculs afin d'évaluer la capacité des collisions de H_2^+ (D_2^+) avec un gaz tampon d'hélium très froid à réaliser le refroidissement vibrationnel et rotationnel de ces ions. Ils ont ainsi montré, qu'en partant d'ions créés par impact électronique, il est théoriquement possible de les refroidir dans l'état ro-vibrationnel fondamental en quelques dizaines de secondes. Une autre solution consiste à créer directement

ces ions dans l'état qui nous intéresse pour la spectroscopie à l'aide d'une méthode de photo-ionisation résonante sélective connue sous le nom de REMPI (Resonance-Enhanced Multiphoton Ionization) [59, 60, 61, 62]. Pour les ions H_2^+ la méthode REMPI consiste en une excitation à 3+1 photons à 303 nm.

La première partie de ce chapitre décrit le jet moléculaire d'H_2. Dans la deuxième partie, nous présentons la méthode REMPI ainsi que la source laser à 303 nm puis les résultats obtenus dans le piège hyperbolique puis dans le piège linéaire.

3.1 Source d'hydrogène moléculaire

L'objectif de cette source est de créer un jet moléculaire d'H_2 dans l'enceinte principale tout en ne compromettant pas la qualité du vide. Dans le cas de l'ionisation par la méthode REMPI on utilise un laser pulsé à 303 nm dont le taux de répétition est 20 Hz. Il n'est donc pas nécessaire d'injecter des molécules en continu, il suffit de créer des bouffées d'H_2 avec le même taux de répétition que le laser puis de synchroniser l'arrivée des molécules avec celui de la lumière, ce qui permet de limiter le flux gazeux injecté dans l'enceinte ultravide. Pour créer ces bouffées d'H_2, on utilise une vanne pulsée de la marque MassSpecpecD BV (modèle ACPV2) de diamètre de buse 150 μm, de temps d'ouverture ajustable de 5 μs à 200 μs et pouvant être opérée jusqu'à 5 kHz.

La source d'H_2^+ est représentée figure 3.1. Elle consiste principalement en la vanne piézoélectrique pulsée et deux skimmers. La vanne pulsée est connectée à un réservoir d'H_2 dans lequel la pression est contrôlée, à l'aide d'une vanne de fuite, entre 100 mbar et 2 bar. Elle peut s'ouvrir et se fermer rapidement avec un délai contrôlable, permettant de créer un jet moléculaire d'H_2. Sur l'axe du jet on place deux skimmers, le premier de diamètre 1 mm placé à une distance de 63 mm de la vanne et le second de diamètre 150 μm placé à une distance de 142 mm du premier skimmer. Ces skimmers ont deux utilités, premièrement, ils permettent de collimater le jet moléculaire en ne sélectionnant que les molécules possédant un vecteur vitesse permettant d'atteindre le centre du piège, deuxièmement ils permettent de créer des vides différentiels entre la zone haute pression, où se trouve la valve pulsée, et la zone basse pression, où se trouve le piège.

La zone haute pression est pompée par une pompe turbomoléculaire de diamètre nominal 160 mm ; la zone intermédiaire, entre les deux skimmers, est pompée à l'aide d'une pompe turbomoléculaire de diamètre 80 mm et d'un module comprenant une pompe ionique et un getter. L'ensemble de la source d'H_2 peut être dissociée de l'enceinte principale par l'intermédiaire d'une vanne à tiroir tout métal.

Afin de contrôler la direction du jet moléculaire la source est reliée à l'enceinte principale via un tuyau flexible et un joint de Cardan, permettant les rotations selon les axes $\boldsymbol{Y}$ et $\boldsymbol{Z}$ de la source d'H_2 par rapport à l'enceinte principale.

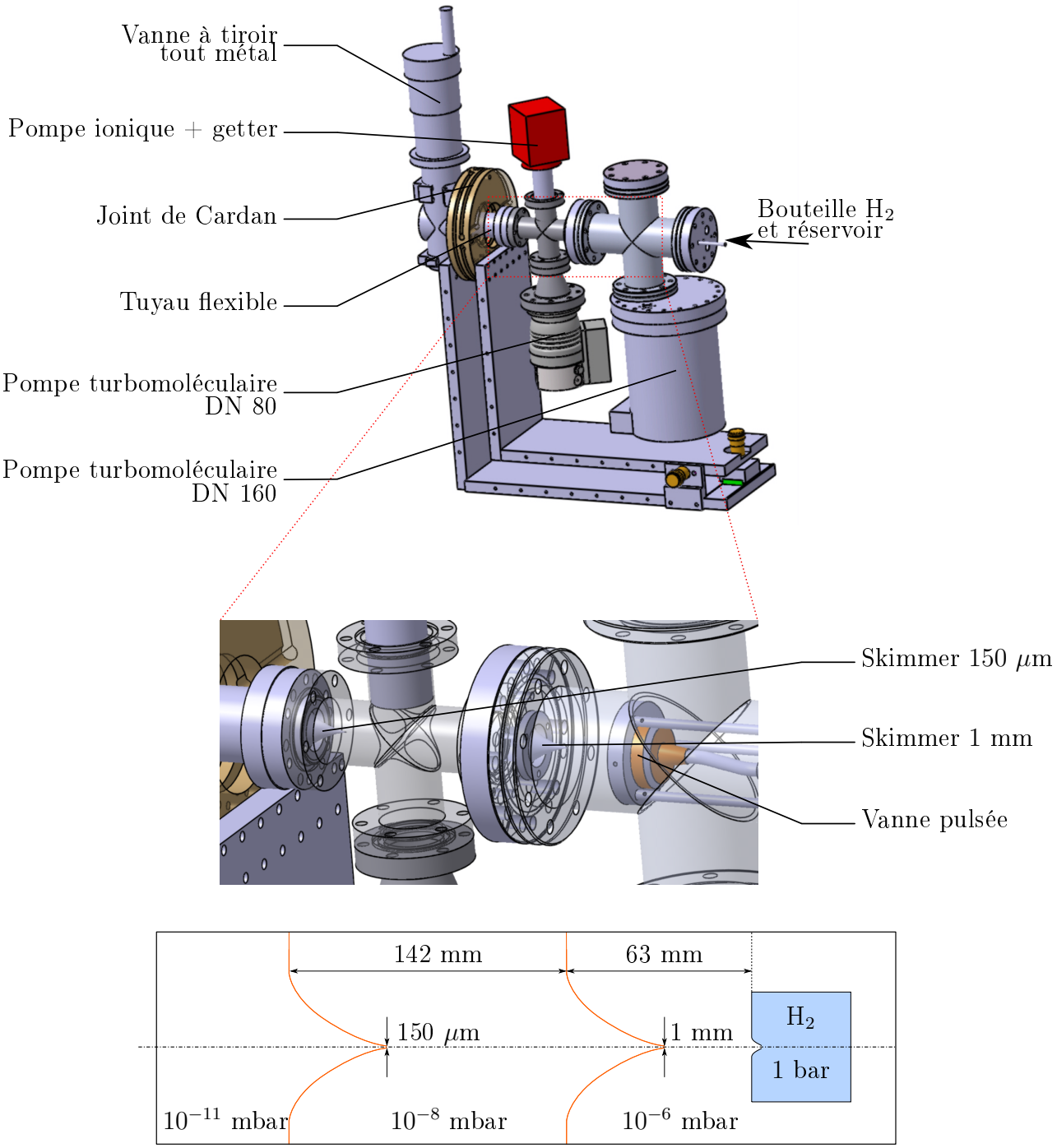

Fig 3.1: *Schéma de la source qui permet de créer le jet moléculaire d'H_2. Le réservoir d'H_2 n'est pas représenté. La vanne pulsée permet de créer des bouffées d'H_2 synchronisées avec le laser d'ionisation à 303 nm. Les deux skimmers de diamètres 1 mm et 150 μm respectivement permettent de collimater le jet moléculaire et de créer des zones de vide différentiel. Le joint de Cardan permet de contrôler la direction du jet. L'ensemble de la source a été testé dans un premier temps sur le piège hyperbolique puis a été implémenté sur le piège linéaire.*

3.2 Photo-ionisation de H_2

3.2.1 La méthode REMPI

La méthode de photo-ionisation REMPI à $n + m$ photons permet de créer des ions dans un état donné. Pour cela, la molécule est d'abord excitée via l'absorption

de n photons dans un état de Rydberg dont la fonction d'onde de cœur ionique est proche de celle de l'état dans lequel on veut créer l'ion. Ensuite la molécule est ionisée via l'absorption de m photons dont l'énergie totale doit être plus grande que l'énergie nécessaire à l'ionisation. L'énergie en excès est principalement emportée par l'électron sous forme d'énergie cinétique.

La méthode REMPI à $3+1$ photons à 303 nm dans H_2 a été étudiée en 1984 par Pratt et al. [60]. En 1987 O'Halloran et al. [61] ont démontré la sélectivité de la création d'ion H_2^+ dans le niveau $v = 0, L = 2$ par l'intermédiaire du niveau excité de H_2 $C^1\Pi_u$ (voir figure 1.1). Ces travaux ont montré que 90% des ions ainsi créés sont dans l'état vibrationnel $v = 0$. La population dans l'état rotationel $L = 2$ a été estimée par la suite [63] comme étant $\geq 97\%$. Cette méthode permettrait donc d'obtenir $\sim 87\%$ d'ions H_2^+ dans l'état $v = 0, L = 2$. Ces résultats montrent que l'utilisation de la méthode REMPI permet d'augmenter la proportion d'ions utiles lors de la spectroscopie d'un facteur 60 si on compare à l'ionisation via l'impact électronique. La probabilité pour une telle transition à $3+1$ photons est proportionnelle à I^4, où I est l'intensité du laser, pour les faibles intensités et est proportionnelle à I^3 si l'étape d'ionisation est saturée. C'est pourquoi il est nécessaire d'utiliser un laser en impulsion très focalisé.

La source laser à 303 nm utilisée dans cette expérience est décrite en détail dans [63]. Elle consiste en un laser à colorant en impulsion de la marque Sirah à 606 nm et d'un module de doublage en fréquence (cristal de BBO en simple passage). Le colorant est un mélange de Rhodamine 610 et 640 dans les proportions 64 % et 36 % respectivement pour une concentration totale de 0,119 g/l. Le laser à colorant est pompé via un laser en impulsion Nd:YAG (à 1064 nm) doublé en fréquence de la marque Quantel. Le laser de pompe à 532 nm peut délivrer des impulsions d'énergie 120 mJ et de durée 5 ns avec un taux de répétition de 20 Hz. On obtient ainsi jusqu'à 20 mJ à 606 nm et environ 4 à 5 mJ à 303 nm après le doublage en fréquence.

3.2.2 Résultats

La figure 3.2 montre un schéma très simplifié du montage qui nous a permis de tester la méthode REMPI dans le piège hyperbolique. Un jet d'H_2 provenant de la source moléculaire décrite dans le paragraphe 3.1 est photo-ionisé par le laser à 303 nm décrit précédemment. Dans ce montage, la distance entre la vanne pulsée et le centre du piège hyperbolique est de 62 cm. Pour cette expérience le temps de création est de $t_c = 3$ s pendant lequel 60 impulsions de gaz et de lumière sont utilisées. Une carte compteur de la marque National Instrument permet de contrôler précisément le délai entre l'ouverture de la vanne piézoélectrique et le déclenchement du laser à 303 nm afin de synchroniser l'arrivée du gaz d'H_2 et de l'impulsion lumineuse au centre du piège. Les ions accumulés dans le piège sont ensuite extraits et envoyés sur un détecteur MCP (Micro-Channel Plate) qui permet de mesurer un signal proportionnel au nombre d'ions H_2^+. Nous avons pu identifier les signaux de la figure 3.3 comme signature de la méthode REMPI puisque nous avons pu observer différents états ro-vibrationnels aux mêmes positions que dans la figure 1 de

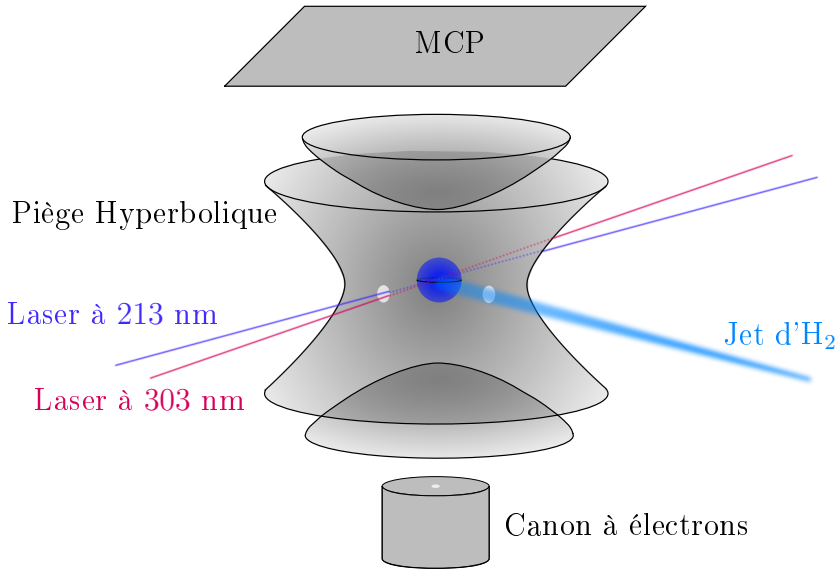

Fig 3.2: *Schéma simplifié du montage permettant de créer et de tester la méthode de photo-ionisation REMPI à 303 nm dans le piège hyperbolique. Le laser à 213 nm permet de photo-dissocier (voir chapitre 4) les ions H_2^+. MCP : détecteur Micro-Channel Plate.*

la référence [60]. La raie qui nous intéresse pour notre expérience est la raie Q(2) à 303,2 nm qui produit des ions H_2^+ dans l'état $(v = 0, L = 2)$.

Pour la suite de ce paragraphe, on se place sur la raie R(0)/R(1) qui est plus intense et on mesure le nombre d'ions créés en fonction de l'énergie de l'impulsion laser. Les résultats obtenus sont présentés sur la figure 3.4 (à gauche). On observe une dépendance cubique du nombre d'ions créés en fonction de l'énergie de l'impulsion du laser. Cette dépendance est en accord avec ce que nous avons dit précédemment sur la méthode REMPI. On mesure aussi le nombre d'ions créés en fonction du délai entre l'ouverture de la vanne et le déclenchement du laser. Les résultats obtenus sont présentés sur la figure 3.4 (à droite). Les données sont ajustées par une fonction gaussienne, on trouve un maximum d'ions créés pour le délai $\Delta t_{opt} = 282{,}6 \pm 0{,}6\,\mu$s. Connaissant la distance entre la vanne et le centre du piège qui est de 62 cm on en déduit la vitesse du jet moléculaire qui est de 2200 m.s^{-1}.

Nous avons voulu ensuite nous assurer qu'une proportion élevée des ions est produite dans un seul état ro-vibrationnel. Pour cela on utilise le principe de la photo-dissociation des ions H_2^+ à 213 nm dont on parlera plus en détail dans le chapitre 4. Les valeurs des sections efficaces de photo-dissociation montrent que la dissociation à 213 nm du niveau $v = 1$ est 72 fois plus efficace que celle de l'état $v = 0$ (voir tableau 4.1 de la section 4.1). L'expérience consiste alors à créer des ions H_2^+ soit dans l'état $v = 0, L = 1$ ou 2 (raie R(0) ou R(1) à 302,47 nm) soit dans l'état $v = 1, L = 1$ ou 2 (raie R(0) ou R(1) à 295,61 nm) puis à appliquer le laser de dissociation pendant une durée t_{diss} variant de 0 à 2,5 s avec une énergie moyenne par impulsion de 10 μJ. On mesure ensuite la fraction restante F d'ions H_2^+ après dissociation. Sur la figure 3.5 on trace cette quantité en fonction du temps de dissociation t_{diss} pour des ions

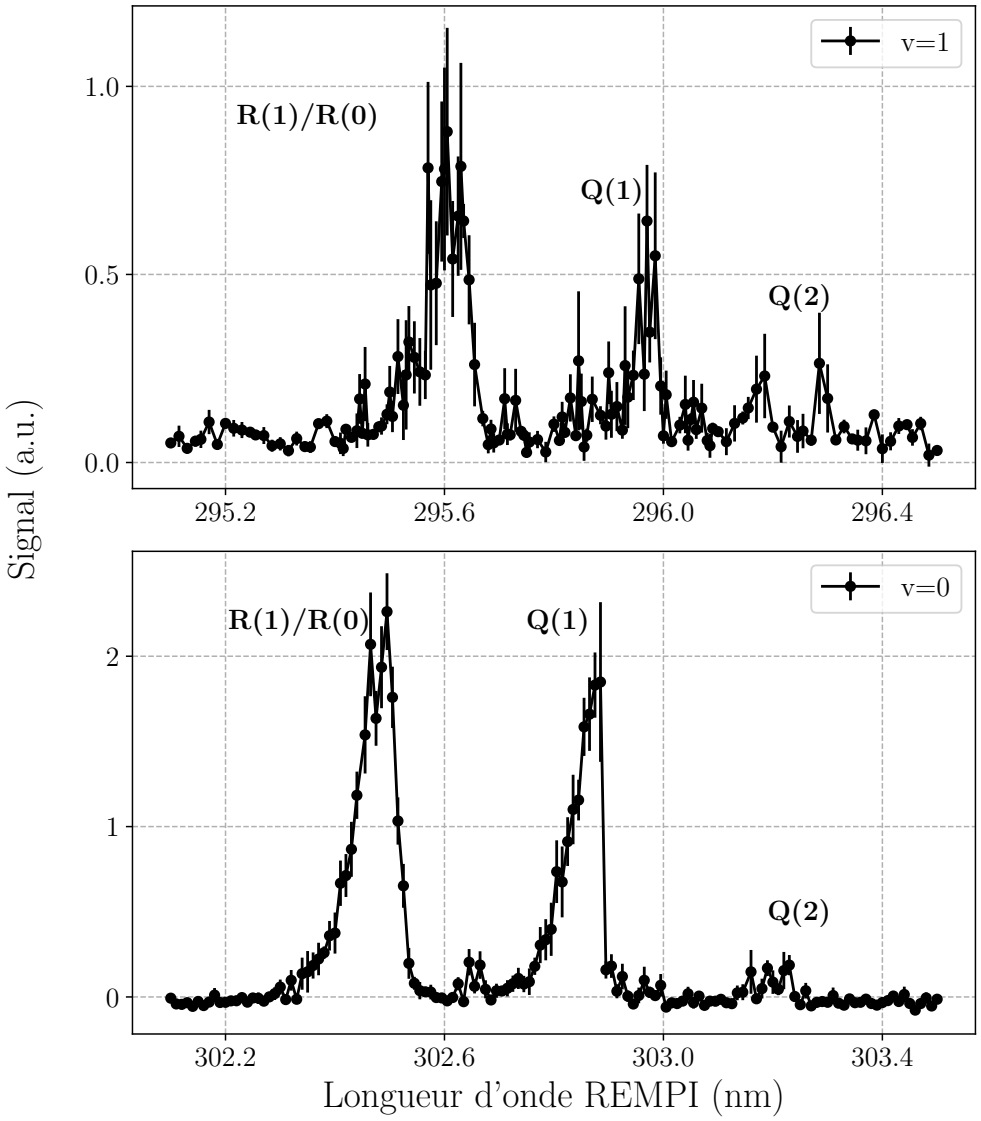

Fig 3.3: *Signal des ions en fonction de la longueur d'onde du laser REMPI. Chaque point est obtenu en moyennant 10 fois. La position des pics est en accord avec les données de la référence [60].*

créés dans $v = 0$ et dans $v = 1$. On observe que F diminue rapidement pour les ions produits dans l'état $v = 1$, et reste proche de 1 pour les ions produits dans l'état $v = 0$. Les courbes superposées aux données sont tracées sans paramètres libres d'ajustement à l'aide du modèle décrit dans le chapitre 4 dans le cas où on considère que 100 % des ions sont dans l'état $v = 0$ ou $v = 1$ (traits pleins sur la figure) et dans le cas où on considère des états mixtes (traits en pointillés sur la figure). Les proportions des états mixtes ont été estimées de manière très approximative à partir de la figure 2 de l'article [60], on a pris : $v = 0$ mixte $\equiv \{p_{v=0} = 95\,\%, p_{v=1} = 5\,\%\}$

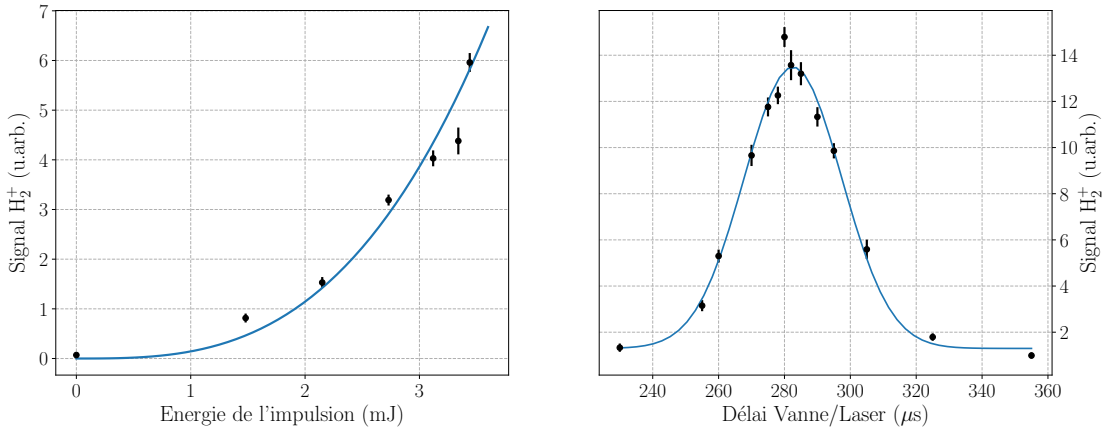

Fig 3.4: *Gauche : signal des ions en fonction de l'énergie de l'impulsion du laser à* 303 nm. *Le laser est placé sur la raie R(0)/R(1). Chaque point est obtenu en moyennant 10 fois. La ligne bleu est un ajustement des données par la loi cubique* $f(t) = At^3$. *On obtient* $A = 0{,}14 \pm 0{,}07\,\mathrm{mJ}^{-3}$. *La dépendance cubique indique que l'étape d'ionisation est saturée. Droite : signal des ions en fonction du délai entre l'ouverture de la vanne pulsée et le déclenchement du laser. Les données sont ajustées par une loi gaussienne. On trouve un maximum d'ions créés pour le délai* $\Delta t_{opt} = 282{,}6 \pm 0{,}6\,\mu$s.

et $v = 1$ mixte $\equiv \{p_{v=0} = 5\,\%, p_{v=1} = 85\,\%, p_{v=2} = 10\,\%\}$. On rappelle que le modèle suppose que la partie rotationnelle des populations est théoriquement pure. Ces résultats montrent que la précision sur les données expérimentales ne permet pas de conclure quant à la pureté vibrationnelle des états créés par la méthode REMPI. Notons néanmoins que si on considère un état mixte composé de moins de 80 % de l'état vibrationnel principal, alors les courbes théoriques s'écartent significativement des données expérimentales. On estime ainsi un minorant de la proportion d'ions créés dans l'état $(v{=}0, L{=}2)$ lorsque le laser est sur la raie Q(2) qui est de $\sim 80\,\%$. Les données montrent aussi que la dissociation ne joue aucun rôle significatif pour les ions dans $v = 0$, où le mécanisme de perte dominant sont les collisions liées à l'augmentation de pression induit par le dégazage causé par le laser de dissociation. Pour les ions dans $v = 1$, où la section efficace de dissociation théorique est 72 fois plus grande que celle de l'état $v = 0$, la dissociation est l'effet dominant. On a ainsi prouvé que l'on est capable de créer des ions H_2^+ dans l'état $(v = 0, L = 2)$ en proportion importante, ce qui est une étape clef pour notre expérience de spectroscopie.

Récemment l'ensemble de la source REMPI a été installé et testé sur le nouveau piège linéaire. Pour ce faire, nous sommes partis d'un nuage pur d'ions Be^+ refroidis par laser (la manière d'obtenir ce cristal est expliquée dans le chapitre 6), puis nous avons appliqué la procédure de photo-ionisation similaire à celle décrite précédemment. Le temps de création est de 3 s et on se place dans un premier temps sur la raie R(0)/R(1) qui est plus intense. Une fois la création terminée et après avoir attendu quelques secondes on voit apparaitre au centre du cristal une ligne sombre qui indique la présence d'ions plus légers que le Be^+, qui ne fluorescent pas et qui

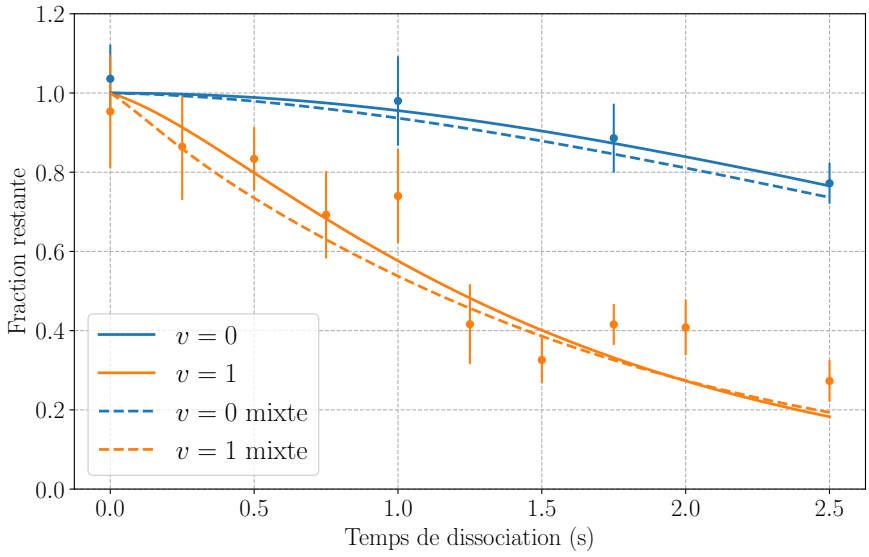

Fig 3.5: *Fraction restante d'ions H_2^+ en fonction du temps d'application du laser de photo-dissociation à 213 nm pour des ions créés par la méthode REMPI dans les niveaux vibrationnels $v = 0, L = 1$ ou 2 (bleu) et $v = 1, L = 1$ ou 2 (orange). L'énergie moyenne par impulsion du laser à 213 nm est de 10 μJ. Les courbes sont tracées sans paramètres libres d'ajustement à l'aide du modèle décrit dans le chapitre 4 (avec $r_c = 1{,}07$ mm et $\gamma = 8{,}8\,\mathrm{W}^{-1}$) dans le cas où on considère que les états vibrationnels sont purs (traits pleins) et dans le cas d'états vibrationnels mixtes (traits pointillés) définis comme : $v = 0$ mixte $\equiv \{p_{v=0} = 95\,\%, p_{v=1} = 5\,\%\}$ et $v = 1$ mixte $\equiv \{p_{v=0} = 5\,\%, p_{v=1} = 85\,\%, p_{v=2} = 10\,\%\}$.*

sont refroidis sympathiquement par les ions Be^+. L'excitation séculaire (voir section 6.2.2) indique que ce sont bien des ions à $q/m = 1/2$ (très probablement des ions H_2^+). Une fois ces premiers ions observés, le signal a été maximisé en optimisant l'alignement du laser de photo-ionisation, la direction de la source d'H_2 à l'aide du joint de Cardan et le délai entre l'ouverture de la vanne et le déclenchement du laser de photo-ionisation. On se place ensuite sur la raie Q(2) et on charge à nouveau des ions H_2^+ par photo-ionisation pendant 3 s dans le piège linéaire où l'on a préalablement chargé un cristal pur de Be^+. La figure 3.6 montre le cristal quelques secondes après le chargement des ions H_2^+. Cette image est obtenue à l'aide de notre système d'imagerie (voir section 6.2), on y voit un cristal de Coulomb composé d'environ 500 ions Be^+ qui fluorescent (en bleu sur l'image en fausses couleurs) et d'environ 40 ions H_2^+ qui ne fluorescent pas et qui sont piégés au centre du cristal. Comme nous l'avons évoqué précédemment, la théorie prévoit que environ 87 % de ces ions sont dans l'état ro-vibrationnel ($v = 0, L = 2$). Ces résultats montrent qu'on arrive à créer et piéger des ions H_2^+ refroidis dont un pourcentage significatif est dans l'état ro-vibrationnel ($v = 0, L = 2$), un Graal pour toutes expériences de spectroscopie à haute résolution et une étape clef dans notre expérience.

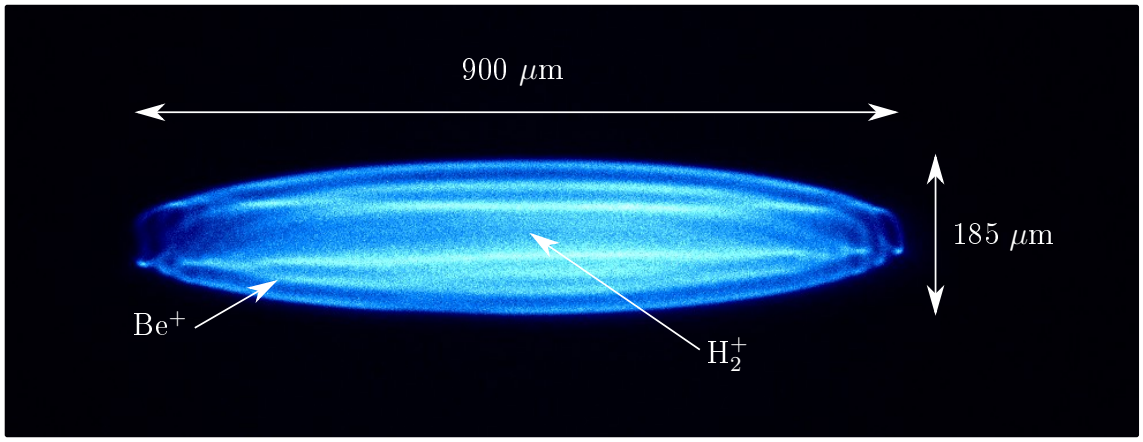

Fig 3.6: *Images en fausses couleurs d'un cristal de Coulomb composé d'ions Be^+ et d'ions H_2^+ dans l'état ro-vibrationnel ($v = 0, L = 2$). L'image a été réalisée grâce au système d'imagerie présenté dans le chapitre 6.2.1 et le temps d'exposition est de 1 s. Le cristal est composé d'environ $\sim 500 \pm 50$ ions Be^+ et d'environ $\sim 40 \pm 20$ ions H_2^+/H_3^+.*

Chapitre 4

Photo-dissociation de H_2^+

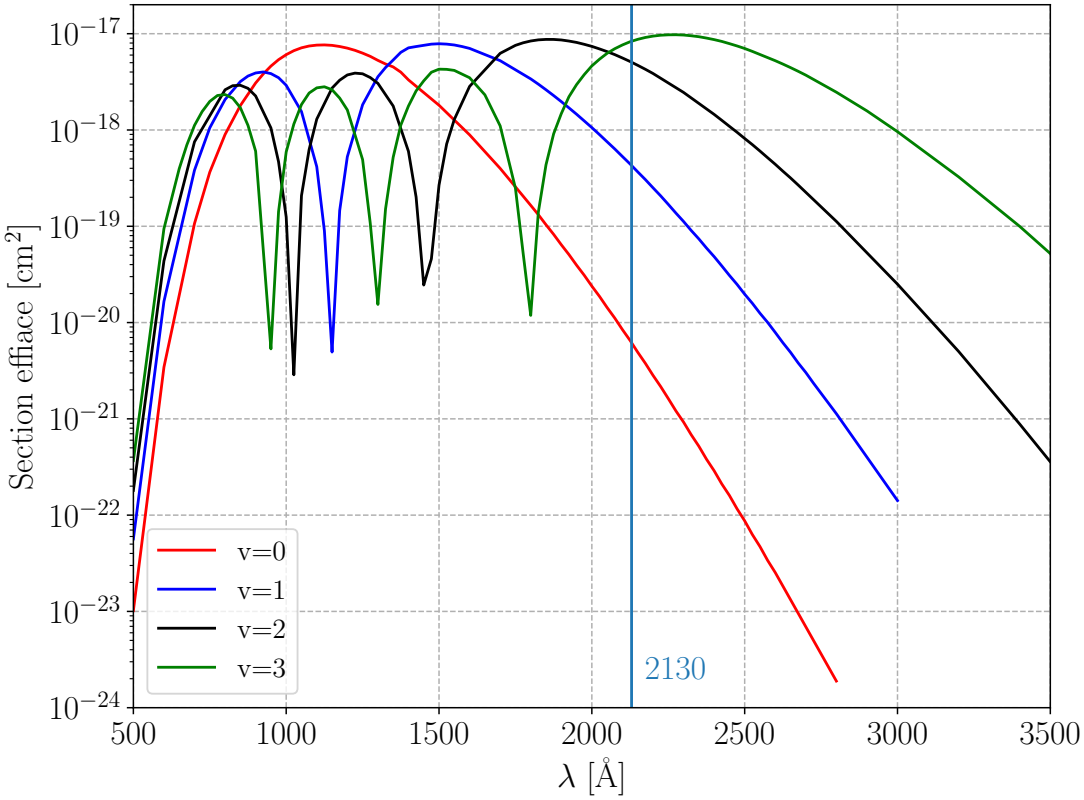

Fig 4.1: *Sections efficaces de photo-dissociation pour différents états vibrationnels de l'ion H_2^+ en fonction de la longueur d'onde du laser de dissociation. Calculs réalisés dans les références [64, 65].*

Comme nous l'avons évoqué en introduction, les niveaux ro-vibrationnels de l'ion H_2^+ sont métastables et la transition à 2 photons ne peut pas être détectée par fluorescence. il est donc nécessaire de trouver une méthode permettant de détecter la transition. Pour cela on peut s'intéresser à des processus qui dépendent de l'état vi-

brationnel des ions H_2^+. En 1968 Chupka et al. ont montré [66] que les réactions (H_2^+ + He $\rightarrow$ HeH^+ + H) et (H_2^+ + Ne $\rightarrow$ NeH^+ + H) ne se produisent pas pour des ions H_2^+ dans l'état vibrationnel fondamental $v = 0$. Ils ont montré qu'à basse énergie cinétique, la section efficace de ces réactions augmente avec le nombre quantique vibrationnel v. On dispose ainsi d'un processus chimique sélectif en niveau vibrationnel de H_2^+ permettant de détecter une transition vibrationnelle de H_2^+. Cette méthode présente toutefois des inconvénients rédhibitoires en injectant des atomes difficiles à pomper dans le cas de l'hélium, et surtout plus lourds que H_2^+ et donc susceptibles de réchauffer les ions piégés [67].

Il existe une méthode de détection optique qui consiste à utiliser la forte dépendance des sections efficaces de photo-dissociation de H_2^+ (voir figure 4.1). Cette méthode est commune à tous les projets de spectroscopie vibrationnelle d'ions hydrogène moléculaire en cours (HD^+ et H_2^+) et permet de les sonder par REMPD (*Resonance Enhanced Multi-Photon Dissociation*) [68]. La méthode de spectroscopie REMPD consiste à détecter la transition $v = 0, L = 2 \rightarrow \nu = 1, L = 2$ en dissociant sélectivement les ions H_2^+ se trouvant dans l'état $\nu = 1, L = 2$ en H^+ et H à l'aide d'un laser en impulsion à 213 nm. Le signal mesuré est un signal de perte d'ions H_2^+ dans le piège en fonction de la fréquence du laser de spectroscopie. Une alternative intéressante serait de compter le nombre d'ions H^+ produits par photo-dissociation, car un tel signal serait exempt de bruit de fond. Cela nécessite qu'une fraction significative des ions produits reste dans le piège. Le photon UV d'énergie 6 eV apporte quelques eV d'énergie cinétique en excès qui se répartit de manière égale entre H^+ et H. Les ions H^+ sont donc très chauds et peu stables dans le piège, ce qui rend cette méthode peu efficace.

Avant d'utiliser cette méthode de spectroscopie, il est important de tester la photo-dissociation. Pour cela nous avons étudié, dans le piège hyperbolique, la photo-dissociation d'ions H_2^+ créés par impact électronique car dans ce cas la distribution des états ro-vibrationels est bien connue. Nous avons ensuite utilisé cette méthode de photo-dissociation résonante afin de caractériser la distribution des états ro-vibrationnels des ions créés par la méthode REMPI décrite au chapitre 3.2 et de vérifier qu'un pourcentage important des ions se trouvent dans l'état $v = 0$, état qui est très peu affecté par le laser de dissociation à 213 nm comme on peut le voir sur la figure 4.1.

La première partie de ce chapitre décrit le modèle de la photo-dissociation des ions H_2^+ à 213 nm, qui permet de comprendre l'évolution du nombre d'ions en fonction du temps d'application du laser de dissociation. En particulier il prend en compte un effet d'augmentation de la pression lié au laser, effet qui a comme conséquence de diminuer la probabilité de survie des ions dans le piège. Dans la deuxième partie, nous présentons les résultats de la photo-dissociation obtenus dans le piège hyperbolique et nous les comparons au modèle.

4.1 Modèle de la dissociation d'ions H_2^+ à 213 nm

Lors de l'ionisation de molécules H_2 par impact électronique les ions H_2^+ sont créés dans différents états ro-vibrationnels. Le taux de photo-dissociation dépend fortement de l'état vibrationnel dans lequel se trouve l'ion. Le tableau 4.1 donne les sections efficaces σ_v calculées par J.P. Karr dans [68] pour les différents états vibrationnels ainsi que la distribution des populations initiales n_v des états vibrationnels dans le cas d'ions H_2^+ créés par impact électronique, déterminée en moyennant les résultats théoriques de [64, 69] et les résultats expérimentaux de [70]. Les valeurs des sections efficaces montrent que la dissociation du niveau $v = 1$ est 72 fois plus efficace que celle de l'état $v = 0$: c'est ce qui rend possible la détection par photo-dissociation. La dépendance des sections efficaces de photo-dissociation avec l'état rotationnel est négligeable au niveau de la précision expérimentale [64, 69].

Etat vibrationnel	Population	Section efficace (m^2)
0	0,120	$5{,}355.10^{-25}$
1	0,191	$3{,}863.10^{-23}$
2	0,190	$4{,}787.10^{-22}$
3	0,1554	$8{,}498.10^{-22}$
4	0,117	$1{,}087.10^{-23}$
5	0,077	$3{,}887.10^{-22}$
6	0,048	$2{,}694.10^{-22}$
7	0,033	$3{,}394.10^{-24}$
8	0,022	$1{,}016.10^{-22}$
9	0,016	$2{,}244.10^{-22}$
10	0,0115	$1{,}996.10^{-24}$
11	0,0080	$1{,}056.10^{-22}$
12	0,0055	$3{,}227.10^{-23}$
>12	0,007	

Tableau 4.1: *Populations des différents états vibrationnels d'ions H_2^+ créés par impact électronique et leurs sections efficaces de photo-dissociation à 213 nm. Les populations ont été calculées et vérifiées expérimentalement dans [64, 70]. Les sections efficaces ont été calculées dans [68, 65].*

L'expérience consiste à créer et piéger un nuage d'ions H_2^+ dans le piège hyperbolique puis à appliquer le laser de dissociation pendant un temps t_{diss}. Pour chaque impulsion du laser à 213 nm de fréquence de répétition f_{rep} les ions ont une probabilité non-nulle d'être dissociés. Après le temps t_{diss}, durant lequel on a appliqué $N_p = t_{diss}/f_{rep}$ impulsions, on mesure le signal des ions H_2^+ non dissociés. Cette mesure est répétée avec le laser de dissociation éteint. On en déduit la fraction restante $F(t_{diss})$ d'ions H_2^+ en fonction du temps de dissociation t_{diss} définie comme le rapport entre le signal des ions avec le laser de dissociation et le signal des ions sans le laser de dissociation.

Le modèle

Nous allons maintenant calculer le signal $F(t_{diss})$ attendu. Pour cela on fera les suppositions suivantes :

- Le piège hyperbolique contient un nuage sphérique d'ions H_2^+ non refroidis de température élevée de l'ordre de 10 000 K avec un profil de densité radiale gaussienne de rayon r_c. Cette distribution spatiale a été vérifiée expérimentalement [71, 72].
- Le laser à 213 nm a un profil gaussien et une longueur de Rayleigh grande devant r_c, ce qui permet de considérer le rayon du faisceau constant dans le nuage d'ions.
- Le temps caractéristique de thermalisation des ions dans le piège est beaucoup plus petit que la période de répétition du laser à 213 nm, ce qui permet de considérer que le profil de densité radiale du nuage reste homogène durant la phase dissociation.

La probabilité de survie d'un ion dans l'état vibrationnel v se situant à une distance ρ de l'axe du faisceau laser à la $i^{ème}$ impulsion laser est donné par :

$$p_{diss,v}^{(i)}(\rho) = \exp\left(-\frac{\lambda_{diss}\sigma_v\Phi^{(i)}(\rho)T}{hc}\right) \tag{4.1}$$

où T est la durée de l'impulsion, σ_v est la section efficace de photo-dissociation de l'état v donnée dans le tableau 4.1 et $\Phi^{(i)}(\rho)$ est le flux d'énergie de la $i^{ème}$ impulsion à une distance ρ de l'axe du faisceau. Comme le profil du faisceau est quasiment cylindrique, on fait l'approximation que le faisceau est gaussien de waist $w_0 = 300\,\mu$m. Le flux d'énergie s'écrit alors :

$$\Phi^{(i)}(\rho) = \frac{2E_{diss}^{(i)}}{\pi w_0^2 T} e^{-2\frac{\rho^2}{w_0^2}}. \tag{4.2}$$

où $E_{diss}^{(i)}$ est l'énergie de la $i^{ème}$ impulsion. Comme nous avons fait l'hypothèse d'un profil de densité radiale gaussien de rayon r_c on peut écrire la densité d'ions normalisée dans le nuage en fonction de la coordonnée sphérique r :

$$\frac{1}{\pi^{3/2} r_c^3} e^{-\frac{r^2}{r_c^2}} \tag{4.3}$$

La coordonnée sphérique r et la coordonnée cylindrique ρ sont reliées par la relation $r^2 = \rho^2 + z^2$ où z est la distance le long de l'axe de propagation du faisceau.

En combinant les équations 4.1, 4.2 et 4.3 on peut déterminer la fraction restante d'ions dans l'état v dans le nuage après l'impulsion n°i, qui s'écrit :

$$p_{diss,v}^{(i)} = \frac{1}{\pi^{3/2} r_c^3} \int_0^{\infty}\int_{-\infty}^{\infty} e^{-\frac{\rho^2+z^2}{r_c^2}} \exp\left(-\frac{2\lambda_{diss}\sigma_v E_{diss}^{(i)}}{\pi h c w_0^2} e^{-2\frac{\rho^2}{w_0^2}}\right) 2\pi\rho\, d\rho\, dz. \tag{4.4}$$

L'intégrale sur z donne $\sqrt{\pi} r_c$ donc la fraction restante d'ions après avoir appliqué N_p impulsions s'écrit :

$$p_{diss,v} = \prod_{i=1}^{N_p} \left\{ \frac{2}{r_c^2} \int_0^\infty e^{-\frac{\rho^2}{r_c^2}} \exp\left(-\frac{2\lambda_{diss}\sigma_v E_{diss}^{(i)}}{\pi h c w_0^2} e^{-2\frac{\rho^2}{w_0^2}} \right) \rho \, d\rho \right\}. \tag{4.5}$$

Finalement on écrit la fraction restante d'ions H_2^+ en prenant en compte tout les états vibrationels :

$$p_{diss} = \sum_v n_v p_{diss,v} \tag{4.6}$$

où n_v est la population d'ions H_2^+ dans l'état v (voir tableau 4.1) tel que $\sum_v n_v = 1$.

Le laser à 213 nm est allumé en envoyant un signal TTL permettant d'activer le Q-switch du laser. Nous avons observé que la puissance du laser augmente lentement puis se stabilise $1 - 2$ s après l'activation du Q-switch. On modélise assez bien ce comportement par un modèle exponentiel dont l'énergie initiale est ηE_{diss} avec $0 < \eta < 1$, de constante de temps τ et dont l'énergie finale est E_{diss}. Les paramètres η et τ ont été déterminés par des mesures directes présentées dans le tableau 4.2. Afin de mesurer l'énergie moyenne des impulsions on mesure la puissance moyenne à l'aide d'un bolomètre et on en déduit l'énergie moyenne définie comme $E_{diss} = P_{moy}/f_{rep}$.

E_{diss} (μJ)	0,12	0,35	0,88	1,76	5,0	9,44
η	0,75	0,76	0,69	0,64	0,52	0,36
τ (s)	0,42	0,26	0,33	0,31	0,28	0,23

Tableau 4.2: *Paramètres η et τ du modèle décrit précédemment. L'énergie a été mesurée directement en sortie du laser.*

Il existe un autre effet que la photo-dissociation qui diminue la probabilité de survie des ions dans le piège provenant des collisions entre les ions et les atomes et molécules résiduels dans l'enceinte à vide. L'effet des pertes dues au gaz résiduel initial est identique pour les expériences dans lesquelles le laser de dissociation est appliqué et celles dans lesquelles il n'est pas appliqué. Cependant, le laser de dissociation lui-même entraîne une augmentation de la pression due à des effets de dégazage induits par la lumière. Cette augmentation de la pression entraîne des pertes qui augmentent avec le temps t_{diss}. Le modèle que l'on utilise pour déterminer ces pertes est expliqué en détail dans la thèse de N. Silitoe [73]. On fait les hypothèses suivantes :

- Sans laser de dissociation à 213 nm et sans canon à électrons la pression dans l'enceinte diminue exponentiellement vers une pression limite et avec une constante de temps β due au pompage. La valeur de cette constante de temps a été déterminée (voir Fig. 3.3 dans [73]) et vaut $\beta = 2{,}4$ s.

- Le taux de perte des ions dans le piège dépend linéairement de la pression (on suppose ici qu'il ne dépend pas de l'état interne de l'ion).
- La période de répétition du laser étant très petite devant le temps caractéristique d'évolution de la pression, on considère l'effet du laser sur la pression comme continu, c'est-à-dire représenté par une équation différentielle.
- Pendant la dissociation, la pression augmente vers une pression limite qui dépend linéairement de la puissance moyenne du laser à 213 nm. Cette hypothèse a été vérifiée sur la figure 3.6 dans [73].

Ce modèle donne la probabilité de survie d'un ion dans le piège en fonction du temps, qui s'écrit

$$p_p = \exp\left[-\gamma P_{diss}\left(t_{diss} + \beta e^{-t_{diss}/\beta} - \beta\right)\right] \tag{4.7}$$

où P_{diss} est la puissance moyenne du laser de dissociation et γ est un facteur qui décrit le taux d'augmentation de la pression dû au laser de dissociation. In fine, la fraction restante d'ions H_2^+ s'écrit :

$$F = p_{diss} \times p_p. \tag{4.8}$$

Dans ce modèle, les seules inconnues sont le rayon du nuage r_c et le facteur γ que l'on va utiliser comme paramètre d'ajustement afin de comparer les résultats expérimentaux présentés dans la suite et le modèle que l'on vient de décrire.

4.2 Résultats

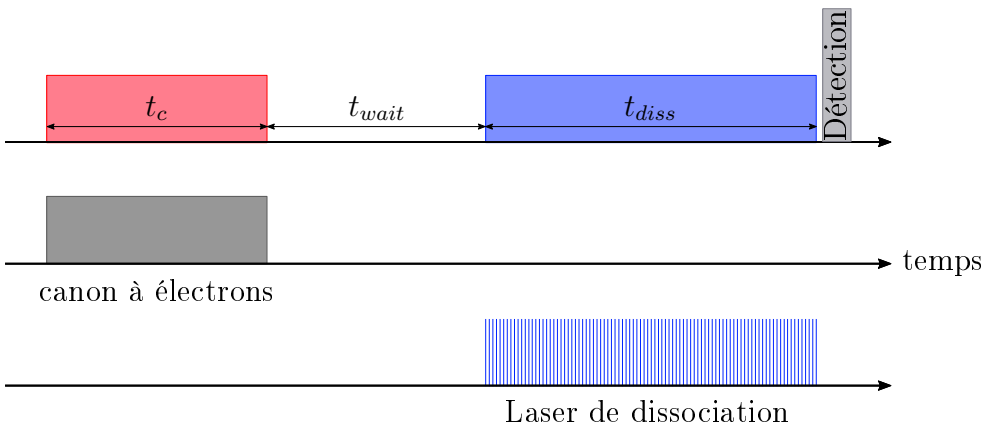

Fig 4.2: *Séquence temporelle de l'expérience décrite dans ce chapitre. t_c : temps de création, t_{wait} : temps mort entre la création et la dissociation, t_{diss} : temps de dissociation.*

La séquence temporelle de l'expérience est représentée sur la figure 4.2, le canon à électrons est allumé pendant un temps de création $t_c = 1$ s durant lequel les électrons émis par le canon vont ioniser, par impact électronique, les molécules d'H_2

présentes dans le gaz résiduel. Les ions H_2^+ ainsi créés sont piégés dans le piège hyperbolique. Une fois la phase de création terminée, on attend pendant une durée variable $t_{wait} = 0 - 2{,}5\,\mathrm{s}$. Puis on applique le laser à $\lambda_{diss} = 213\,\mathrm{nm}$ avec une fréquence de répétition $f_{rep} = 12{,}5\,\mathrm{kHz}$ et une énergie par impulsion E_{diss} pendant un temps variable $t_{diss} = 0 - 2{,}5\,\mathrm{s}$ telle que $t_{wait} + t_{diss} = 2{,}5\,\mathrm{s}$ reste constant.

La photo-dissociation se fait avec le laser à 213 nm décrit dans la partie 2.3.3. Le laser est focalisé au centre du piège avec un waist $w_0 = 300\,\mu\mathrm{m}$.

Le signal des ions H_2^+ présents dans le piège est mesuré en les extrayant du piège et en les détectant sur un détecteur MCP (micro-channel plate). Une première mesure du signal N_{diss} est faite avec le laser de dissociation allumé pendant un temps t_{diss} avec une énergie moyenne par impulsion $E = P_{meas}/f_{rep}$ (où P_{meas} est la puissance moyenne mesurée avec un wattmètre) puis une seconde mesure N_{nodiss} est faite avec le laser éteint pendant un temps t_{diss}. On en déduit la fraction restante d'ions après dissociation :

$$F(t_{diss},E) = \frac{N_{diss}(t_{diss},E)}{N_{nodiss}(t_{diss})}. \tag{4.9}$$

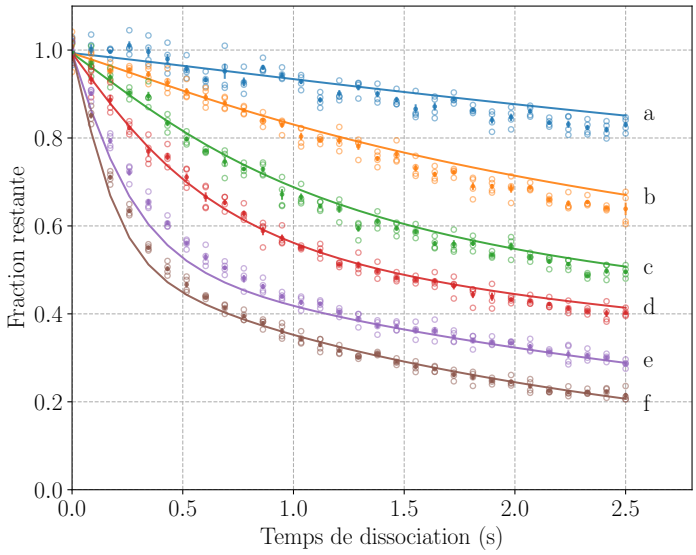

Fig 4.3: *Fraction restante d'ions en fonction de la durée de dissociation pour différentes valeurs de l'énergie moyenne par impulsion : (a)* $0{,}12\,\mu\mathrm{J}$ *(b)* $0{,}35\,\mu\mathrm{J}$ *(c)* $0{,}88\,\mu\mathrm{J}$ *(d)* $1{,}76\,\mu\mathrm{J}$ *(e)* $5{,}0\,\mu\mathrm{J}$ *(f)* $9{,}44\,\mu\mathrm{J}$. *Chaque point est la moyenne de 4 données représentées par les cercles. Les données sont ajustées par l'équation 4.8 avec* $r_c = 0{,}93 \pm 0{,}01\,\mathrm{mm}$ *et* $\gamma = 4{,}8 \pm 0{,}1\,\mathrm{W}^{-1}$.

Les résultats obtenus sont représentés sur la figure 4.3 pour 6 valeurs différentes de l'énergie moyenne par impulsion données dans le tableau 4.2. Chaque point a été répété 4 fois. Dans le modèle décrit précédemment, les seules inconnues sont r_c et γ. Les données sont ajustées par l'équation 4.8 et on trouve $r_c = 0{,}925 \pm$

0,010 mm et $\gamma = 4{,}8 \pm 0{,}1\,\mathrm{W}^{-1}$. Le modèle semble compatible avec les données expérimentales obtenues. Néanmoins on remarque plusieurs écarts entre les courbes théoriques et les points expérimentaux. Pour les temps courts (entre 0 et ~ 1 s), les ajustements sur les courbes de basse énergie (a, b, c et d) sont en accord avec les données expérimentales alors que pour les courbes de haute énergie (e et f) les données montrent que les fractions restantes sont plus grandes que celles prédites par le modèle. Pour les temps plus longs (entre $\sim$1 et 2,5 s), c'est le contraire mis à part que pour les basses puissances le modèle prédit des fractions restantes plus grandes que celles observées. Afin d'expliquer ces différences, nous avons deux hypothèses, la première est que le modèle n'est pas complet et qu'il manque la description d'un effet qui dépend de l'énergie des impulsions, la deuxième est que les mesures des puissances moyennes (qui permettent de déterminer l'énergie moyenne par impulsion) sont erronées pour des raisons que l'on ignore. Notons que les mesures de puissance des lasers UV, surtout pour des lasers en impulsions, sont toujours assez délicates car l'UV a tendance à abimer les matériaux par photo-blanchiment par exemple.

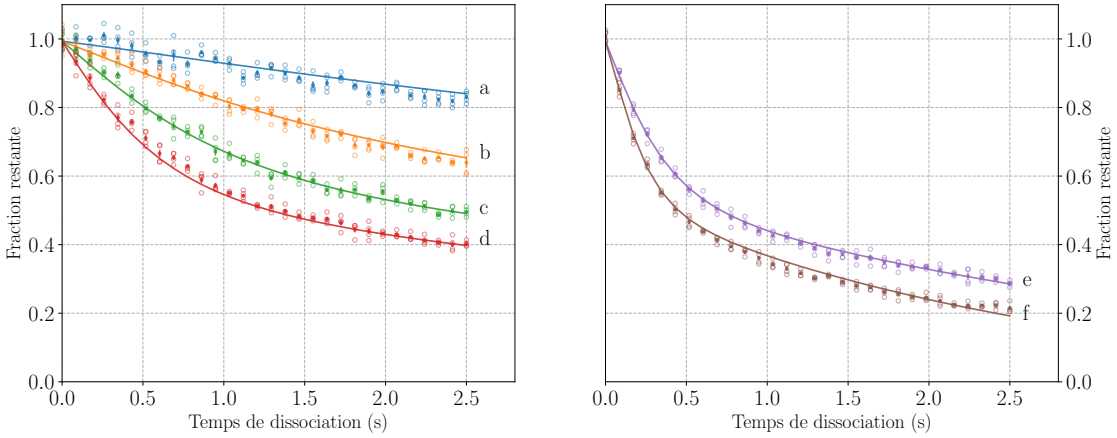

Fig 4.4: *Fraction restante d'ions en fonction de la durée de dissociation pour les basses énergies : (a)* 0,12 μJ *(b)* 0,35 μJ *(c)* 0,88 μJ *(d)* 1,76 μJ *à gauche et pour les hautes énergies : (e)* 5,0 μJ *(f)* 9,44 μJ *à droite. Chaque point est la moyenne de 4 données représentées par les cercles. Les données sont ajustées par l'équation 4.8 et on trouve à gauche :* $r_c^{be} = 0{,}887 \pm 0{,}008$ mm *et* $\gamma^{be} = 7{,}0 \pm 1{,}9\,\mathrm{W}^{-1}$ *et à droite :* $r_c^{he} = 1{,}07 \pm 0{,}01$ mm *et* $\gamma^{he} = 8{,}8 \pm 0{,}4\,\mathrm{W}^{-1}$.

Pour bien se rendre compte de cet effet lié à l'énergie du faisceau UV, on a réalisé sur la figure 4.4 de gauche un ajustement des données expérimentales à basse énergie et on trouve $r_c^{be} = 0{,}887 \pm 0{,}008$ mm et $\gamma^{be} = 7{,}0 \pm 1{,}9\,\mathrm{W}^{-1}$, et sur la figure 4.4 de droite un ajustement des données expérimentales à haute énergie et on trouve $r_c^{he} = 1{,}07 \pm 0{,}01$ mm et $\gamma^{he} = 8{,}8 \pm 0{,}4\,\mathrm{W}^{-1}$. Finalement, on trace sur la figure 4.5 la superposition des figures 4.3 et 4.4. On voit ainsi qu'en séparant les cas basse énergie et haute énergie on arrive à améliorer l'ajustement des données. Néanmoins le fait que l'on trouve des valeurs différentes pour les paramètres r_c et γ indique en effet que le modèle n'est pas complet et/ou que les énergies mesurées ne sont pas correctes. Nous obtenons tout de même une description raisonnable de l'évolution

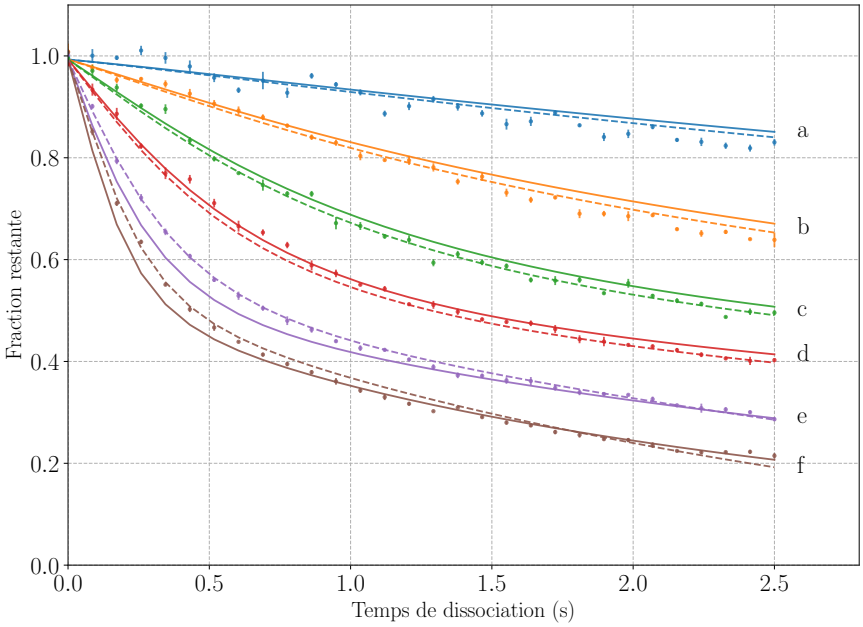

Fig 4.5: *Superposition des résultats de la figure 4.3 (en trait plein) et de la figure 4.5 (en pointillé).*

de la fraction restante d'ions H_2^+ créés par impact électronique sous l'effet du laser de photo-dissociation à 213 nm.

In fine, ce modèle nous a permis de tracer les courbes de la fraction restante d'ions H_2^+ créés par la méthode REMPI (voir figure 3.5 du chapitre 3.2) sans paramètres libres d'ajustement. Afin d'obtenir ces résultats on a travaillé avec des impulsions de $10\,\mu$J, on a donc choisi les paramètres $r_c^{he} = 1{,}07 \pm 0{,}01$ mm et $\gamma^{he} = 8{,}8 \pm 0{,}4\,\mathrm{W}^{-1}$. Les populations vibrationnelles sont discutées dans le chapitre 3.2. En conclusion, ces résultats montrent que le principe de la spectroscopie REMPD est valable. En effet, nous devons être capable de dissocier les ions dans l'état $v = 1$ sans affecter les ions dans l'état $v = 0$. Les résultats de la figure 3.5 montrent qu'après 2,5 s de photo-dissociation on a perdu environ 20 % des ions dans $v = 0$ et environ 80 % des ions dans $v = 1$, soit une efficacité de détection de $\sim 60\,\%$ pour la spectroscopie REMPD.

Chapitre 5

Refroidissement d'ions piégés

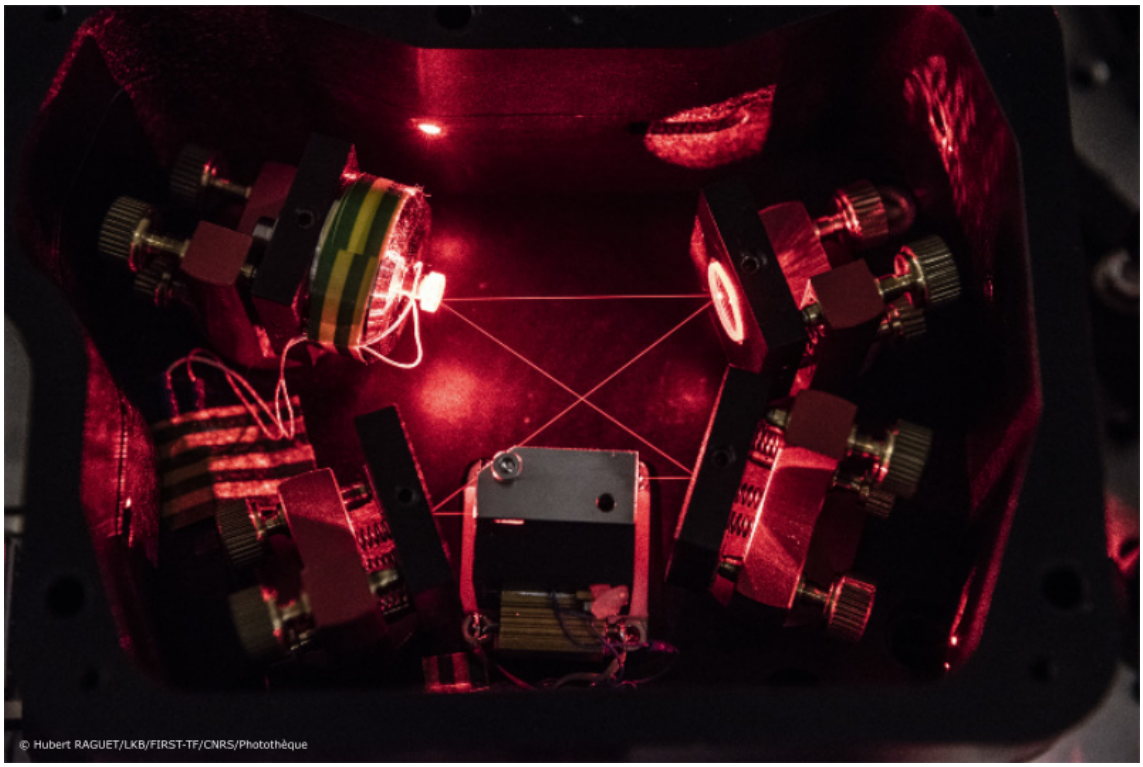

Fig 5.1: *Photo de la cavité de doublage*

L'objectif de ce chapitre est de présenter la méthode de refroidissement Doppler des ions Be^+ à 313 nm, nécessaire pour le refroidissement sympathique des ions H_2^+. Dans la première partie on décrit dans les grandes lignes la théorie du refroidissement laser Doppler. On s'intéresse en particulier au cas d'une particule confinée dans un potentiel harmonique car, en première approximation, cela correspond au cas d'un ion dans un piège radio-fréquence. On décrit ensuite la structure de l'ion Be^+ et présente la transition à 313 nm qui permet de le refroidir. La partie 2 est consacrée aux sources lasers qui permettent d'obtenir un faisceau à 626 nm, étape nécessaire avant le doublage en fréquence. On présente deux types de sources : une source qui consiste à effectuer la somme de fréquence de deux lasers à fibre infrarouges et une source qui consiste à réaliser un montage maître-esclave à partir de deux diodes laser. Finalement on présente la cavité de doublage qui consiste en une cavité de

surtension en anneau de type Fabry-Perot dans laquelle on place un cristal non-linéaire de BBO afin de réaliser le doublage en fréquence de la source à 626 nm et d'obtenir un faisceau à 313 nm qui permet de refroidir les ions Be^+.

5.1 Refroidissement Doppler

Afin de diminuer la température des ions dans le piège nous utilisons le refroidissement laser Doppler. Ce principe a d'abord été proposé indépendamment par Hänsch et Schawlow [74] (1975) et par Wineland et Dehmelt [75] (1975). Il a fallu néanmoins attendre l'avènement des lasers accordables pour voir apparaître la première expérience de refroidissement laser sur des ions piégés réalisée par Wineland et al. en 1978 [75]. Nous allons dans cette partie nous intéresser à un modèle assez simple du refroidissement laser afin d'écrire les quelques équations permettant de justifier notre choix de sources laser. Une étude bien plus approfondie du refroidissement laser peut être trouvée par exemple dans le cours de l'école de physique des Houches de C. Cohen-Tannoudji [76].

5.1.1 Force de pression de radiation

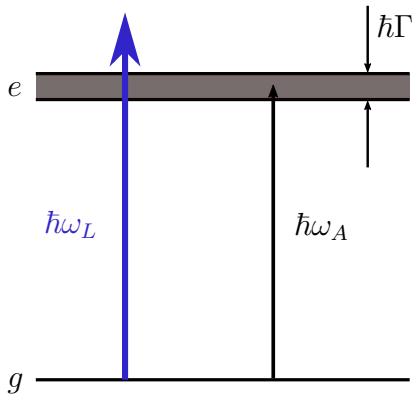

Fig 5.2: *Modélisation de la transition atomique par deux niveaux g et e*

On s'intéresse ici à la force moyenne agissant sur un atome au repos placé dans un faisceau lumineux monochromatique et quasi-résonnant. L'atome est modélisé par un système à deux niveaux g et e. Le niveau g est le niveau fondamental de l'atome. Le niveau excité e est instable, et il peut se désexciter par émission spontanée vers le niveau g. L'inverse de la durée de vie du niveau e est notée Γ, et l'écart en énergie entre g et e est notée $\hbar\omega_A$ (figure 5.2). L'atome est éclairé par un faisceau lumineux supposé monochromatique de fréquence $\omega_L/2\pi$. Pour que la modélisation de la transition atomique par un système à deux niveaux soit correcte, il faut que cette fréquence soit proche de la fréquence de résonance $\omega_A/2\pi$. Nous supposerons donc que le désaccord $\delta = \omega_L - \omega_A$ vérifie $|\delta| \ll \omega_L, \omega_A$.

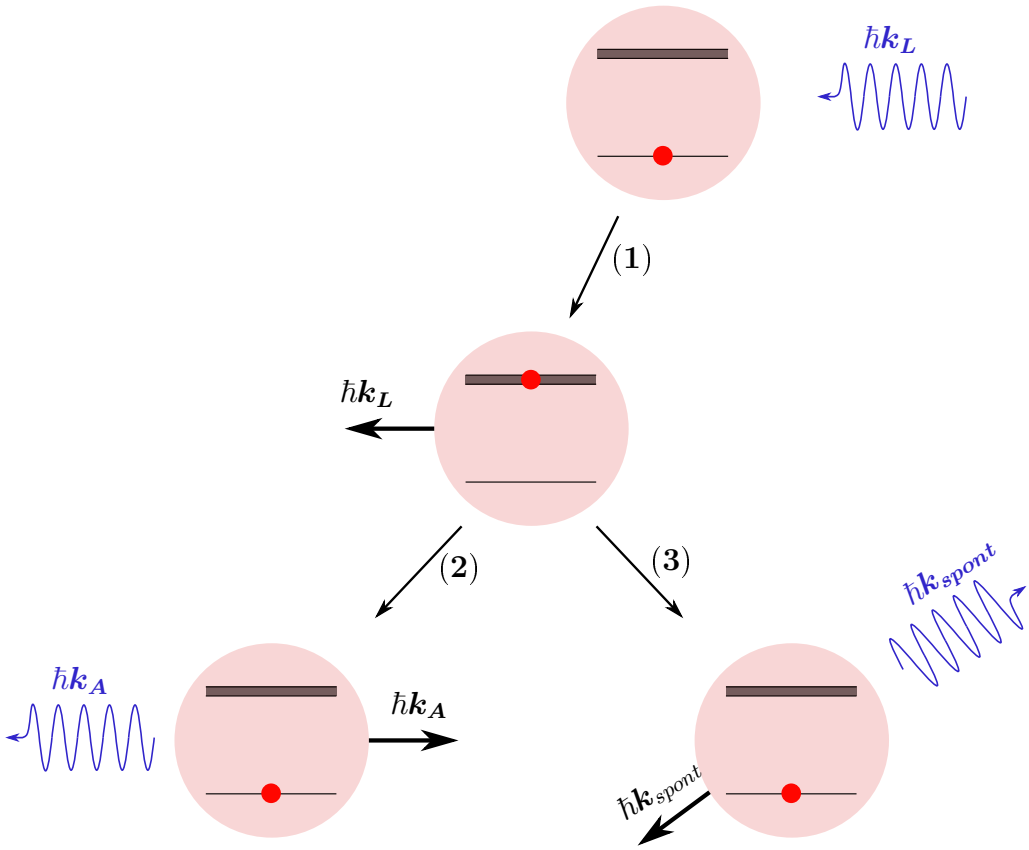

Fig 5.3: *Cycle d'absorption (1) et d'émission stimulée (2) ou spontanée(3).*

Lorsque l'atome absorbe un photon (figure 5.3) issu de ce faisceau, son impulsion change de $\hbar \boldsymbol{k_L} \simeq \hbar \boldsymbol{k_A}$ (**1**) et l'atome se retrouve dans l'état excité e, cette absorption est nécessairement suivie d'une émission puisque l'atome ne peut rester excité indéfiniment. Ici il y a deux possibilités. Soit l'atome se désexcite par émission stimulée d'un photon (**2**) et son impulsion change alors de $-\hbar \boldsymbol{k_L}$ et on a un bilan d'échange d'impulsion nul, soit l'atome se désexcite par émission spontanée (**3**) d'un photon, son impulsion change alors de $\hbar \boldsymbol{k_{spont}}$. Au changement $\hbar k$ de l'impulsion de l'atome correspond un changement $v_{rec} = \hbar k/m$ de la vitesse de l'atome, où m est la masse de l'atome. Pour un ion béryllium absorbant ou émettant un photon à 313 nm (voir section 5.1.3) la vitesse de recul est $v_{rec} = 14\,\mathrm{cm.s^{-1}}$. Ce processus d'absorption-émission se répète de nombreuses fois et lors de l'émission spontanée, la probabilité qu'il émette le photon dans telle direction ou dans telle autre, dans un sens ou dans le sens opposé, est la même de sorte qu'en moyenne $< \hbar \boldsymbol{k_{spont}} >= 0$. Le bilan d'échange d'impulsion pendant une durée T montre que l'impulsion de l'atome varie de $n\hbar k_L$ où n est le nombre de cycles absorption/émission spontanée pendant la durée T. L'atome subit une force moyenne appelée pression de radiation qui s'écrit [76] :

$$\boldsymbol{F_{PR}} = \frac{\hbar \boldsymbol{k_L} \Gamma}{2} \frac{s}{1+s} \tag{5.1}$$

avec

$$s = \frac{\Omega_R^2/2}{\delta^2 + \Gamma^2/4}, \tag{5.2}$$

le paramètre de saturation. Ω_R est la fréquence de Rabi qui s'exprime sous la forme

$$\Omega_R^2 = \Gamma^2 \frac{I}{2I_{sat}} \tag{5.3}$$

où I est l'intensité du faisceau et $I_{sat} = \frac{\hbar\Gamma\omega_A^3}{12\pi c^2}$ l'intensité de saturation. Dans le cas particulier d'une onde laser plane progressive, l'expression 5.1 reste valable même si l'atome est en mouvement à vitesse $\boldsymbol{v}$, pourvu qu'on remplace le désaccord δ par $\delta - \boldsymbol{k_L} \cdot \boldsymbol{v}$, le terme $\boldsymbol{k_L} \cdot \boldsymbol{v}$ provenant du décalage par effet Doppler de la fréquence du laser vu par l'atome en mouvement.

L'équation 5.1 montre que le sens de la force est celui de $\boldsymbol{k_L}$. Ainsi afin de ralentir une particule, non confinée (un atome neutre par exemple), dans une direction de l'espace, il est nécessaire d'utiliser deux faisceaux contra-propageants. Pour un ion piégé, comme il est confiné et qu'il oscille, nous allons montrer dans la suite qu'un seul faisceau suffit.

5.1.2 Refroidissement Doppler d'ions piégés

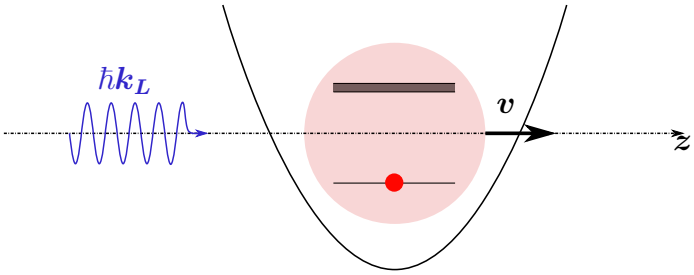

Fig 5.4: *Refroidissement Doppler à une dimension pour une particule confinée dans un potentiel harmonique.*

On s'intéresse maintenant à l'interaction entre un ion piégé et un faisceau laser. De manière générale, on ne peut plus utiliser le modèle de la force de pression de radiation vu précédemment. Si on se place dans le régime a_u et $q_u^2 \ll 1$, le mouvement de l'ion dans le piège peut être décrit par celui d'un oscillateur harmonique. Il faut alors en principe coupler l'évolution des degrés de liberté externes et internes de l'ion [77], ce qui permet d'expliquer par exemple le *resolved sideband cooling* si $\Gamma \ll \omega_{x,y,z}$ [78]. Néanmoins, dans le régime $\Gamma \gg \omega_{x,y,z}$ (régime de couplage faible), on peut utiliser la force de pression de radiation pour décrire l'interaction lumière / matière.

On se place à 1D, on considère le mouvement de l'ion, sans laser, comme celui d'un oscillateur harmonique à la fréquence $\omega/2\pi$. L'ion est éclairé par une onde

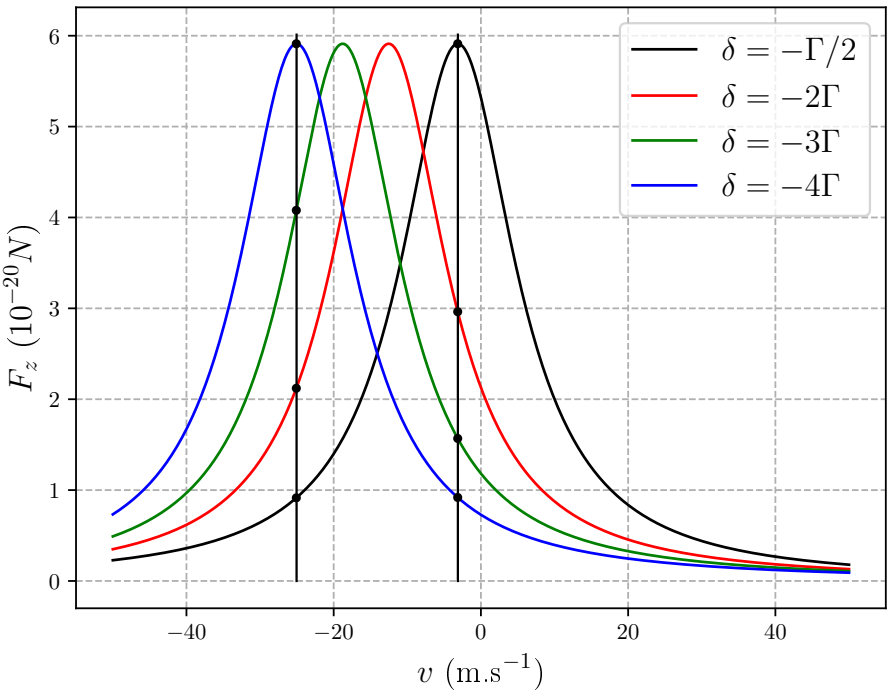

Fig 5.5: *Force Doppler en fonction de la vitesse de l'ion pour différents désaccords : $\delta = -\Gamma/2, -2\Gamma, -3\Gamma, -4\Gamma$ (respectivement en noir, rouge, vert et bleu) dans le cas $I = 2I_{sat}$.*

laser se propageant le long de l'axe $\boldsymbol{z}$ (fig. 5.4). L'ion subit une force de pression de radiation selon l'axe $\boldsymbol{z}$ qui s'écrit :

$$F_z = \frac{\hbar k_l \Gamma}{2} \frac{\Omega_R^2/2}{(\delta - k_L v)^2 + \Gamma^2/4 + \Omega_R^2/2} \tag{5.4}$$

Cette force est représentée sur la figure 5.5 pour différentes valeurs négatives du désaccord δ. On voit que la force atteint un maximum lorsque la vitesse de l'ion est négative, et que la position de ce maximum dépend du désaccord. Cela indique deux choses. Premièrement, lorsque l'ion se déplace dans le sens contraire au laser, il va subir une force qui s'oppose à son mouvement, alors que lorsque qu'il se déplace dans le même sens, il subit une force qui le "pousse" mais bien plus faible. L'effet net sur un aller retour de l'ion est donc un ralentissement. Deuxièmement, pour un ion de vitesse v_0, cette force est maximale pour un désaccord donné par $\delta_m = -k_L v_0$. En choisissant le désaccord, on choisit les classes de vitesse qui sont ralenties efficacement.

Pour les ions Be^+ on a vu dans la partie précédente que, sans refroidissement, les ions les plus chauds dans le piège ont une température $T_{max} \sim 13\,000\,\mathrm{K}$, soit une vitesse $v_{max} \sim 3500\,\mathrm{m.s^{-1}}$. On verra dans la partie suivante que pour refroidir les ions Be^+ on utilise un laser à 313 nm, ce qui donne $k_L \simeq 2{,}0\,10^7\,\mathrm{m^{-1}}$ et une

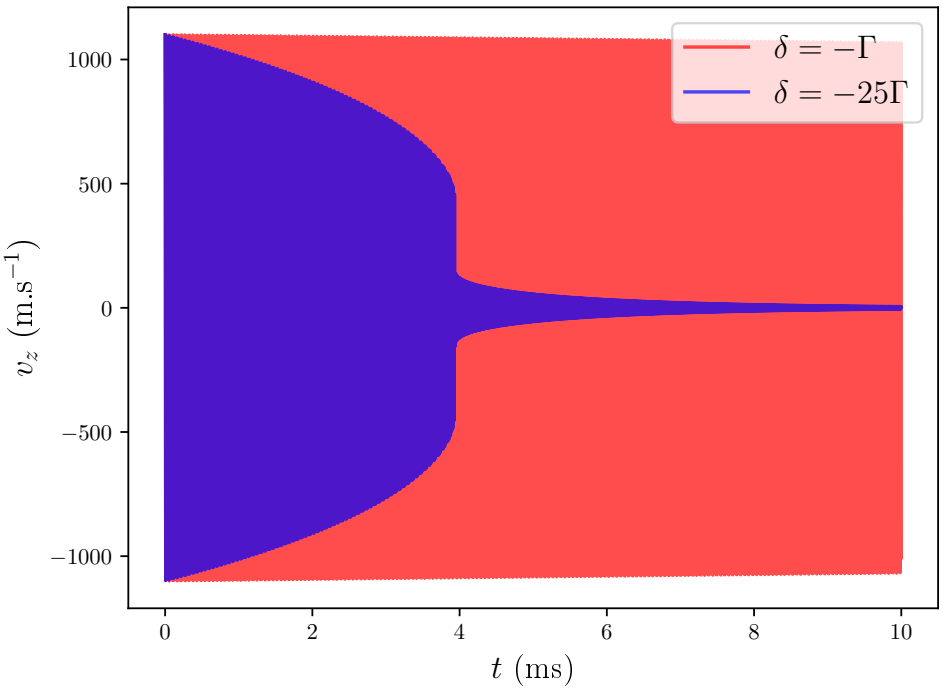

Fig 5.6: *Vitesse d'un ion Be$^+$ piégé dans un potentiel harmonique illuminé par un laser se propageant le long de l'axe z. En bleu : $\delta = -25\Gamma$, en rouge : $\delta = -\Gamma$.*

transition de largeur $\Gamma/2\pi = 19{,}4\,\mathrm{MHz}$. En utilisant la relation précédente, on trouve un désaccord optimal afin de refroidir les ions Be$^+$ piégés les plus chauds $\delta_{opt}/2\pi = -574\Gamma \simeq 10\,\mathrm{GHz}$.

En réalité, l'ion étant piégé dans un potentiel harmonique, sa vitesse va osciller entre $-v_0$ et $+v_0$ (sans refroidissement) à la fréquence $\omega_z/2\pi$. Dans ce cas, il n'est pas nécessaire de se placer au désaccord optimal, en effet, même pour un désaccord inférieur à l'optimal, sur une période du mouvement, la vitesse prendra une valeur telle que $F_z = F_{max}$. Cependant, plus v_0 est élevée, plus le temps pendant lequel la force sera proche de son maximum sera court. Pour estimer l'efficacité du refroidissement, on écrit l'équation différentielle du mouvement de l'ion sous l'effet du laser. La position $z(t)$ vérifie :

$$\ddot{z}(t) - \frac{\hbar k_L \Gamma}{2m} \frac{\Omega_R^2/2}{(\delta - k_L \dot{z}(t))^2 + \Gamma^2/4 + \Omega_R^2/2} + \omega_z^2 z(t) = 0. \tag{5.5}$$

Cette équation inclut la force de rappel du piège ainsi que la force de pression de radiation mais ne prend pas en compte les reculs dus aux émissions spontanées. Elle n'est valable que pour des amplitudes de vitesse qui restent très grandes devant la vitesse de recul du Be$^+$.

On résout cette équation différentielle à l'aide du logiciel Python et on trace figure 5.6, la vitesse $v_z(t)$ de l'ion au cours du temps pour deux valeurs du désaccord,

$\delta = -\Gamma$ et $\delta = -25\Gamma$ avec $v_0 = 1100\,\mathrm{m.s^{-1}}$, $I = 10I_{sat}$ et $\omega_z/2\pi = 500\,\mathrm{kHz}$. On voit que pour une valeur du désaccord de $\delta = -25\Gamma \simeq 2\pi\,500\,\mathrm{MHz}$ et pour une intensité du faisceau de $I = 10I_{sat} = 8{,}5\,\mathrm{mW/mm^2}$, l'enveloppe de la vitesse de l'ion diminue lentement au début, puis pour $t \simeq 4\,\mathrm{ms}$ la vitesse chute brusquement pour ensuite continuer à diminuer lentement. Pour un désaccord de $\delta = -\Gamma$ le refroidissement des ions rapides est peu efficace.

Néanmoins, dans le cas $\delta = -25\Gamma$ et pour des temps $t > 4\,\mathrm{ms}$ le refroidissement devient beaucoup moins efficace car le désaccord est trop grand vis-à-vis de la vitesse de l'ion. Afin d'optimiser le refroidissement, il est alors intéressant de se rapprocher de la résonance en diminuant le désaccord. Une autre méthode consiste à utiliser deux faisceaux, le premier, avec un grand désaccord, va refroidir les ions rapides et le deuxième, avec un désaccord faible, va refroidir les ions lents.

En principe, après un certain temps, la vitesse des atomes devrait tendre vers 0 et la température devrait atteindre $T = 0\,\mathrm{K}$. Néanmoins ce modèle simplifié ne prend pas en compte les fluctuations aléatoires de la force provenant de l'émission spontanée des photons, ce qui a pour conséquence de chauffer l'ion. La température limite provient d'un équilibre entre le refroidissement Doppler et ce chauffage. On peut montrer [79] que la température minimale que l'on peut atteindre par refroidissement Doppler est obtenue pour des intensités faibles $I \longrightarrow 0$ et pour $\delta = -\Gamma/2$ et elle vaut :

$$T_{min} = \frac{\hbar\Gamma}{2k_B} = 0{,}47\,\mathrm{mK} \tag{5.6}$$

où k_B est la constante de Boltzmann. Lorsque l'on refroidit un nuage d'ions, l'interaction de Coulomb entre les particules chargées couple l'ensemble des degrés de liberté. Ainsi, en refroidissant avec un faisceau dans une seule direction, on refroidit en réalité dans les trois directions de l'espace.

Plusieurs expériences [80, 81] d'ions refroidis par laser dans un piège linéaire ont montré qu'en raison de processus de chauffage tels que le chauffage radiofréquence (micro-mouvement), la limite Doppler n'est pas atteinte avec des grands nombres d'ions et qu'une estimation optimiste de la température limite est de 10 mK. Nous n'avons pas cherché à mesurer précisément la température des ions dans notre piège, en effet nous avons vu en introduction que pour diminuer suffisamment l'effet Doppler du second ordre la température des ions H_2^+ doit être $< 165\,\mathrm{K}$, ce qui sera nécessairement le cas ici.

5.1.3 L'ion béryllium

La figure 5.7 montre un diagramme des niveaux d'énergie de l'ion Be^+. Sa configuration électronique est $1s^2 2s^1$ et son spin nucléaire est $I = 3/2$. Le niveau fondamental $S_{1/2}$ se sépare en deux niveaux hyperfins $F = 1$ et $F = 2$ séparés de $\nu_{HFS} = 1{,}25\,\mathrm{GHz}$. Le niveau excité $P_{3/2}$ lui se sépare en 4 niveaux hyperfins $F = 0{,}1{,}2{,}3$ séparés d'environ 1 MHz. Pour le refroidissement nous utilisons la

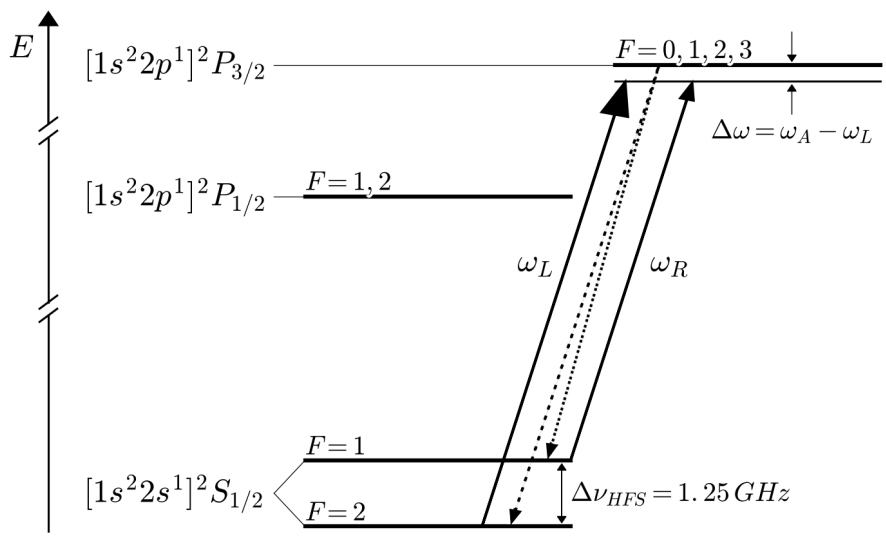

Fig 5.7: *Premiers niveaux d'énergies de l'ion* Be^+

transition $^2S_{1/2}(F = 2) \leftrightarrow {}^2P_{3/2}$ qui est à une fréquence $\nu_{Be} = 957{,}396\,616\,6$ THz (soit une longueur d'onde dans le vide $\lambda = 313{,}133$ nm) et qui a une largeur $\Gamma_{Be} = 19{,}4$ MHz. Les quatre niveaux hyperfins du niveau $P_{3/2}$ sont confondus à l'échelle de la largeur de raie. Le niveau excité $^2P_{3/2}$ pouvant se désexciter dans les deux niveaux hyperfins, la transition n'est pas tout à fait fermée et le refroidissement n'est pas encore possible. Pour remédier à cela, une solution consiste à implémenter un deuxième laser (laser *repompeur*) décalé de 1,25 GHz par rapport au premier afin de ramener les ions du niveau $^2S_{1/2}(F = 1)$ dans le niveau $^2S_{1/2}(F = 2)$ via le niveau excité $^2P_{3/2}$. Une autre solution consiste à appliquer un champ magnétique $\boldsymbol{B}$ parallèle au faisceau laser lui même polarisé σ^+ ou σ^-. Grâce aux règles de sélection et au pompage optique vers les sous-niveaux Zeeman de m extrême, l'ion Be^+ se comporte comme un système à 2 niveaux sur une des deux transitions $^2S_{1/2}(F = 2, m_F = \pm 2) \leftrightarrow {}^2P_{3/2}(F = 3, m_F = \pm 3)$.

5.2 Sources Lasers

Synthétisons les caractéristiques que doit posséder la source laser afin de pouvoir refroidir les ions Be^+ piégés :

- une longueur d'onde $\lambda = 313{,}133$ nm,
- une accordabilité de 500 MHz ($\sim 25\,\Gamma$),
- une largeur spectrale < 2 MHz,
- la possibilité d'atteindre $10 I_{sat} = 8{,}5\,\mathrm{mW/mm^2}$ sur un waist d'environ 400 μm, soit une puissance d'environ 2 mW.

Les matériaux semi-conducteurs émettant à 313 nm n'existant pas encore, il existe principalement deux moyens d'obtenir une source laser continue à 313 nm. Le

premier consiste à quintupler en fréquence un laser à fibre à 1565 nm, très puissant ($\sim$ 20 W), afin d'obtenir du 313 nm [82]. Le deuxième consiste à doubler en fréquence une source laser à 626 nm.

Jusque récemment on utilisait principalement comme source à 626 nm des lasers à colorant [78]. Avec l'apparition des lasers à fibres et le développement très récent des diodes lasers à 626 nm de nouvelles méthodes ont vu le jour comme par exemple, la somme de fréquences de deux lasers à fibre à 1050 nm et 1550 nm pour obtenir une source à 626 nm [83]. Des sources moins onéreuses sont aussi apparues, par exemple utiliser une diode laser à 626 nm montée en cavité étendue [84]. Ou encore, une méthode consistant à injecter une diode laser à 626 nm de type DBR [85, 86] dans une diode Fabry-Perot de puissance (montage que l'on nomme maître-esclave).

Parmi ces méthodes, deux sont en place dans notre expérience, la génération de 626 nm en faisant la somme de fréquence de deux lasers à fibre (voir section 5.2.1) et le montage maître-esclave (voir section 5.2.2). Le cahier des charges pour ces sources découle de celui de la source à 313 nm. La source doit être accordable sur 250 MHz et doit posséder une largeur spectrale < 1 MHz. Pour l'intensité, on montrera dans la section 5.3, que 70 mW à 626 nm sont suffisants afin d'atteindre l'intensité de saturation pour un faisceau de 1 mm^2. Dans les deux cas, on effectue ensuite un doublage en fréquence dans une cavité de doublage décrite dans la partie 5.3.

5.2.1 Lasers à fibres

Cette méthode trouve son origine au NIST en 2011 [83]. Elle consiste à réaliser la somme de fréquence de deux lasers à fibres, un à 1051 nm et un à 1550 nm afin d'obtenir une source laser à 626 nm.

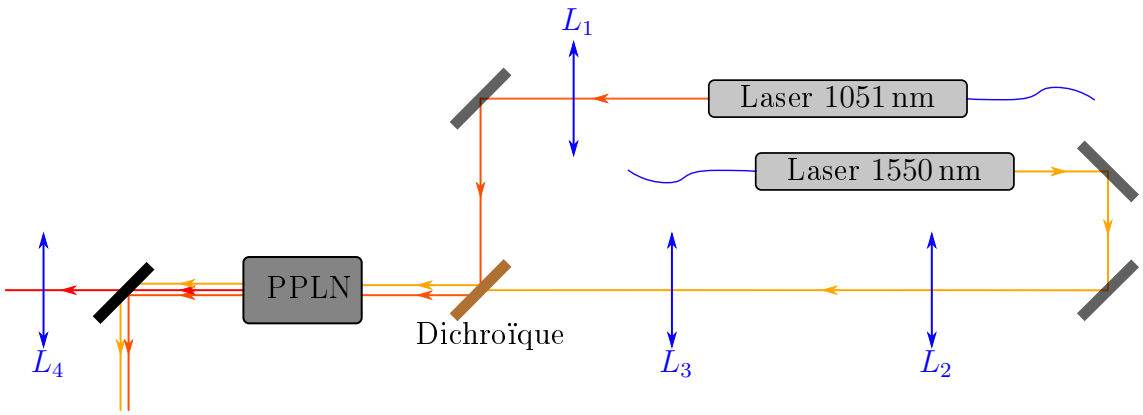

Fig 5.8: *Schéma du montage pour réaliser la somme de fréquence de deux lasers à fibres.* $L_1 = 120$ mm, $L_2 = -50$ mm, $L_3 = 60$ mm, $L_4 = 200$ mm. *Dichroïque modèle LWP-45-RS1064-TS1550-P. Ce montage a été réalisé par A. Douillet.*

La figure 5.8 montre un schéma du montage expérimental. Des lasers à fibre de la marque NKT délivrant environ 10 mW à 1051 nm (1550 nm) sont directement

injectés dans des amplificateurs à fibre permettant de délivrer jusqu'à 4,5 W (5,2 W) à la longueur d'onde souhaitée. Les amplificateurs sortent sur des fibres à maintien de polarisation connectées à des collimateurs délivrant des faisceaux de diamètre 2 mm. Ces faisceaux sont combinés à l'aide d'un filtre dichroïque de la marque Thorlabs (modèle LWP-45-RS1064-TS1550-P). La somme de fréquence se fait dans un cristal PPLN de la marque Covesion en quasi accord de phase. La condition de quasi accord de phase étant critique en température, le cristal est monté dans un four le maintenant précisément à 173,52 °C. Les lentilles L_1, L_2 et L_3 permettent de focaliser et de faire coïncider les deux faisceaux au centre du cristal avec un recouvrement optimal. A la sortie du cristal, on place un filtre IR permettant de filtrer la lumière à 1051 nm et à 1550 nm, ne laissant ainsi passer que la lumière à 626 nm qui est collimatée à l'aide de la lentille L_4. Le faisceau ainsi obtenu est ensuite injecté dans une fibre optique afin de la transporter vers la cavité de doublage. Nous avons obtenu jusqu'à 1,8 W à 626 nm pour 4 W à 1051 nm et 4 W à 1550 nm en entrée du PPLN, soit un taux de conversion de $11{,}3.10^{-2}\,\mathrm{W}^{-1}$.

Récemment nous avons fait l'acquisition d'une deuxième source à 626 nm dans le cadre de la collaboration GBAR (Gravitational Behavior of Antimatter at Rest). Cette source est similaire à celle décrite précédemment à l'exception que la somme de fréquence est faite dans un PPLN en guide d'onde (voir figure 5.9 de gauche) de la marque NTTElectronics (modèle WS-0626-000-A-B-C). Réaliser la somme de fréquence dans un guide d'ondes permet de maximiser le recouvrement des deux faisceaux sommés et ainsi d'optimiser l'efficacité. Néanmoins la puissance maximale autorisée en entrée est plus faible que pour le PPLN classique au risque de brûler la fibre. Nous avons obtenu avec ce PPLN jusqu'à 500 mW à 626 nm pour 833 mW à 1051 nm et 667 mW à 1550 nm en entrée du PPLN, soit un coefficient de conversion de $0{,}9\,\mathrm{W}^{-1}$ (voir figure 5.9 de droite).

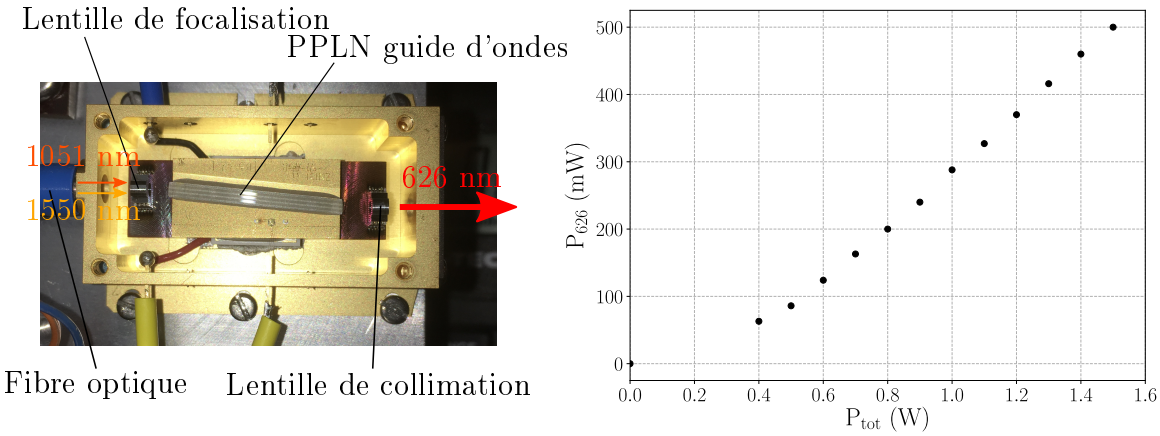

Fig 5.9: *Gauche : Photo du PPLN fibré. La lentille de focalisation couple les faisceaux à* 1050 nm *et* 1550 nm, *provenant de la fibre optique, dans le PPLN qui génère la somme de fréquence à* 626 nm. *Le faisceau en sortie à* 626 nm *est collimaté à l'aide de la lentille de collimation. Droite : puissance du faisceau de sortie à* 626 nm *en fonction de la somme des puissances des faisceaux à* 1051 nm *et* 1550 nm.

Les lasers à fibre sont spectralement fins, on estime la largeur à 626 nm à environ 100 kHz (donnée constructeur), et facilement accordables sur une gamme d'environ 1 GHz. Cette méthode, bien que très couteuse (on estime la totalité du montage à $\sim$ 100 k€) est aussi extrêmement robuste et facile à entretenir.

5.2.2 Diode laser

Nous avons aussi mis au point une troisième source laser à 626 nm utilisant des diodes laser et en réalisant un montage maître-esclave qui, bien que moins robuste, est aussi bien moins couteux.

Ce montage permet de créer une source dont les qualités spectrales et la puissance sont chacune contrôlées séparément. En effet, dans les bonnes conditions, injecter de la lumière du laser maître dans le laser esclave force l'esclave à osciller à la même fréquence que le laser maître. Grâce à cette méthode le laser esclave puissant peut hériter des qualités spectrales du laser maître de faible puissance.

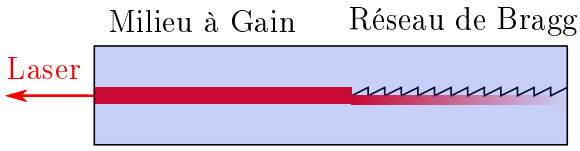

Fig 5.10: *Diode laser DBR*

Laser maître Le laser maître est une diode dite DBR (Distributed Bragg Reflector laser) qui a pour avantage un contrôle en fréquence très reproductible en ne jouant que sur le courant d'alimentation et sur la température de la diode. La figure 5.10 est un schéma simplifié de ce type de diode, qui consiste en un milieu à gain de type semi-conducteur (AlGaInP) dans lequel est inclus un réseau de Bragg qui sélectionne la longueur d'onde émise. La diode est montée dans un boîtier TO-3 dans lequel se trouve un module Peltier afin de la refroidir et d'atteindre la longueur d'onde souhaitée et de la maintenir à température. Le faisceau en sortie de la diode est directement collimaté à l'aide d'une lentille.

On s'intéresse tout d'abord aux qualités spectrales du laser. On a donc réalisé un battement entre le laser DBR et le laser à 626 nm de la partie précédente, que l'on sait spectralement fin (environ 100 kHz). La figure 5.11 montre ce battement. Elle a été obtenue en recentrant et en moyennant 25 enregistrements du battement. La largeur du battement nous donne ainsi une borne supérieure de la largeur spectrale de notre source : (775 ± 71) kHz. La diode peut aussi être accordée en longueur d'onde sur une gamme d'environ 2 nm. De ces points de vue, la diode DBR satisfait nos exigences.

La diode DBR a néanmoins quelques défauts qui l'empêchent d'être utilisée directement pour le doublage de fréquence. Tout d'abord sa puissance est relativement

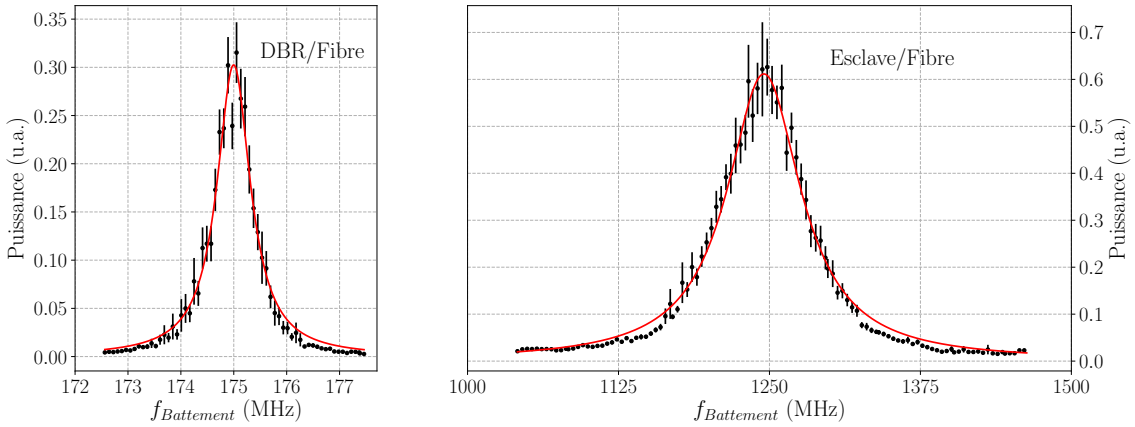

Fig 5.11: *Gauche : battement entre laser à fibre et la diode DBR. Droite : battement entre laser à fibre et le laser esclave (diode Fabry-Perot). Les courbes sont ajustées par une fonction lorentzienne.*

faible, de l'ordre de 60 mW mais son plus gros défaut vient du fait que son mode transverse est loin d'être TEM_{00}. Il est donc impossible de l'injecter efficacement dans la cavité de doublage. Lors de l'injection dans une fibre monomode, le taux de couplage est assez faible (33 %), on aurait donc trop peu de lumière pour le doublage.

Laser esclave Le laser de puissance utilisé est une diode laser Fabry-Perot HL63133DG de longueur d'onde 637 nm et pouvant atteindre jusqu'à 170 mW de puissance. La diode est montée dans un cube en aluminium comprenant une lentille de collimation. Afin que l'injection fonctionne, il faut que les longueurs d'ondes naturelles du maître et de l'esclave soient proches. Pour cela, la diode esclave est refroidie à −35 °C à l'aide d'un module Peltier double étage (Marlow NL2063T). Afin d'éviter la condensation, le tout est monté dans une enceinte hermétique en laiton, refroidie par eau.

Afin d'observer ses caractéristiques spectrales, on a réalisé un battement entre ce laser et le laser à fibre. La figure 5.11 a été obtenue en recentrant et en moyennant 20 enregistrements du battement. On a comme borne supérieure de la largeur spectrale du laser esclave : (78 ± 9) MHz. Cette valeur montre que le laser esclave seul ne peut pas être utilisé pour le doublage en fréquence et le refroidissement de Be^+.

L'injection maître-esclave Le schéma du montage est donné figure 5.12, le laser maître traverse d'abord un jeu de lentilles afin d'optimiser l'injection dans une fibre monomode à maintien de polarisation Thorlabs (modèle P3-630-PM-FC-20) connectée à un collimateur Thorlabs (modèle F240APC-B). On a une puissance de 30 mW avant la fibre, et 10 mW après, soit 33 % d'efficacité. La fibre sert ici à rejoindre le laser esclave et à filtrer spatialement le mode pour obtenir un mode gaussien. L'injection est faite par le polariseur intermédiaire d'un isolateur optique double étage. Il traverse ensuite un prisme anamorphoseur qui va élargir le faisceau d'un

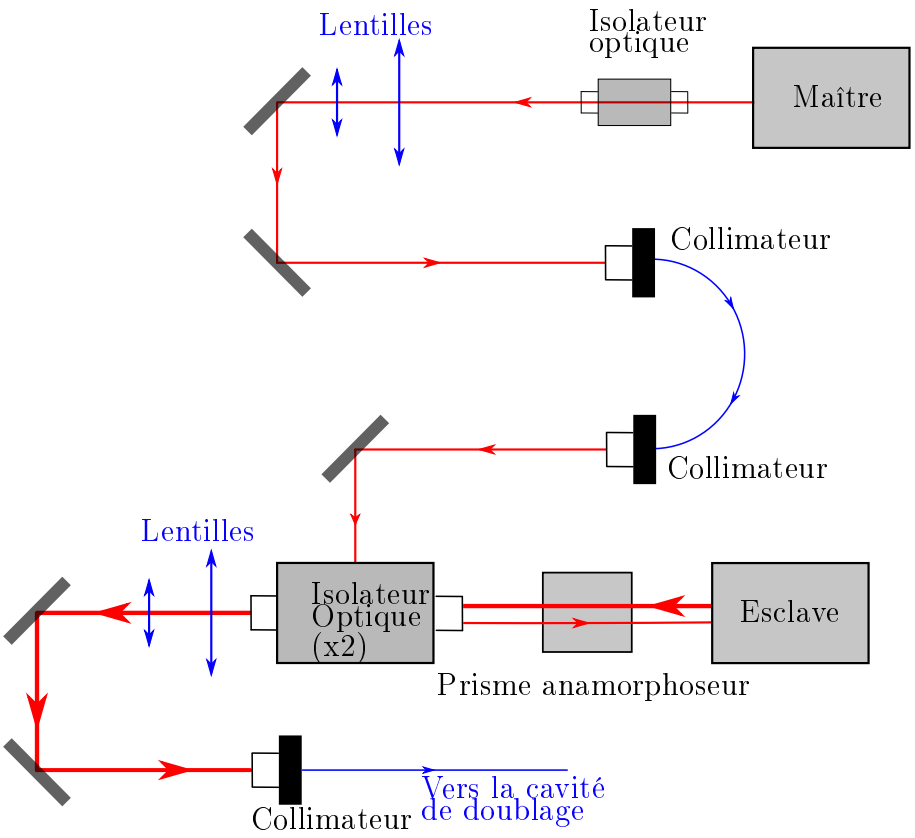

Fig 5.12: *Schéma du montage d'injection de la diode esclave. P.A : Prisme Anamorphoseur.*

facteur 2 dans le plan de la table optique afin de se superposer le mieux possible avec le faisceau issu du laser esclave. Le faisceau issu du laser esclave passe tout d'abord par le prisme, puis par l'isolateur optique, il traverse ensuite un jeu de lentilles afin d'optimiser son couplage dans une fibre monomode à maintien de polarisation connectée à un collimateur Schäfter Kirchhoff (modèle 60FC-4-M5-33) qui transporte le faisceau puissant vers la cavité de doublage. On arrive ainsi à coupler environ 65 % de la puissance dans la fibre, soit une puissance de 70 mW dans un mode TEM_{00} à 626 nm en entrée de la cavité de doublage. Lorsque l'injection fonctionne, on retrouve les qualités spectrales de la diode DBR sur le laser esclave. De plus la longueur d'onde du laser esclave devient identique à celle de la diode DBR et on arrive à balayer la longueur d'onde de la diode DBR sur une gamme d'environ 1 nm tout en maintenant l'injection.

5.3 Cavité de doublage

Dans cette section nous étudions en détails les différentes parties permettant le doublage en fréquence de notre source à 626 nm afin d'obtenir la source à 313 nm qui permettra de refroidir les ions Be^+. On choisit, afin de réaliser le doublage en fréquence, un cristal de BBO (Bêta-borate de baryum) placé dans une cavité de surtension. Le laser repompeur quant à lui est obtenu à l'aide d'un modulateur électro-optique (EOM de la marque Qubig) placé en sortie de la cavité.

La cavité utilisée dans cette expérience est similaire à celle utilisée dans [87] et [88], et a été conçue par F.M.J. Cozijn et al. à Amsterdam. Similaire à celle décrite dans la récente publication de Hannig et al., la cavité est constituée d'un bloc monolithique afin de minimiser les instabilités mécaniques [89]. On trouve des cavités similaires dans toutes les expériences qui nécessitent de refroidir des ions Be^+ [83, 90].

5.3.1 Doublage de fréquence : optique non linéaire

L'optique non linéaire est l'étude des phénomènes optiques, qui apparaissent dans un milieu matériel soumis à un champ $\vec{E}$, présentant une réponse non linéaire par rapport à ce champ. Ces propriétés nécessitent des ondes intenses, c'est pourquoi il a fallu attendre l'avènement des premiers lasers afin de rendre possible une étude systématique des phénomènes d'optique non linéaire. Notons néanmoins que certains de ces phénomènes étaient connus avant l'invention des premiers lasers, les meilleurs exemples étant les effets électro-optiques Kerr [91, 92] et Pockels. Dans cette section nous allons nous intéresser aux équations de l'optique non linéaire dans le cas particulier du doublage en fréquence. Une étude plus approfondie peut être trouvée par exemple dans la référence [93].

Équation de propagation Ces phénomènes appartenant au domaine de l'électromagnétisme, ils peuvent être décrits par les équations de Maxwell. En l'absence de charges ou de courants externes et dans un milieu non magnétique, on peut écrire les équations de Maxwell pour le champ électrique, $\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r},t)$, et magnétique, $\boldsymbol{H}(\boldsymbol{r},t)$ sous la forme :

$$\begin{aligned} \boldsymbol{\nabla} \times \boldsymbol{E} &= -\frac{\partial \boldsymbol{B}}{\partial t} \\ \boldsymbol{\nabla} \times \boldsymbol{H} &= \frac{\partial \boldsymbol{D}}{\partial t} \\ \boldsymbol{\nabla} \cdot \boldsymbol{B} &= 0 \\ \boldsymbol{\nabla} \cdot \boldsymbol{D} &= 0 \end{aligned} \tag{5.7}$$

Avec, $\boldsymbol{B} = \mu_0 \boldsymbol{H}$, où c est la vitesse de la lumière, et $\boldsymbol{D} = \epsilon_0 \boldsymbol{E} + \boldsymbol{P}$.

Dans la plupart des cas, quand le champ appliqué est suffisamment faible, on peut développer la polarisation $\boldsymbol{P}$ sous la forme d'une série de puissances du champ $\boldsymbol{E}$

$$\boldsymbol{P} = \epsilon_0(\chi^{(1)}\boldsymbol{E} + \chi^{(2)}\boldsymbol{E}\boldsymbol{E} + ...) \tag{5.8}$$

Dans cette définition la susceptibilité $\chi^{(n)}$ est un tenseur d'ordre $n+1$ qui dépend de la structure du milieu non linéaire considéré. On représentera alors le vecteur polarisation $\boldsymbol{P}$ sous la forme

$$\boldsymbol{P} = \boldsymbol{P_L} + \boldsymbol{P_{NL}} \tag{5.9}$$

où $\boldsymbol{P_L(\omega)} = \epsilon_0\chi^{(1)}(\omega)\boldsymbol{E}(\omega)$ est la partie linéaire et $\boldsymbol{P_{NL}(\omega)} = \epsilon_0\chi^{(2)}(\omega;\omega_i,\omega_j)\boldsymbol{E}(\omega_i)\boldsymbol{E}(\omega_j)$ la partie non linéaire du vecteur polarisation (on ne s'intéresse ici qu'à la composante du deuxième ordre). De plus, l'indice du milieu est défini comme $n^2 \equiv \epsilon_0(1+\chi^{(1)})$. Les équations de Maxwell 5.7 nous permettent alors d'écrire l'équation de propagation de la lumière dans un milieu non linéaire sous la forme :

$$\boldsymbol{\nabla} \times (\boldsymbol{\nabla} \times \boldsymbol{E}) + \frac{n^2}{c^2}\frac{\partial^2 \boldsymbol{E}}{\partial^2 t} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2}\frac{\partial^2 \boldsymbol{P_{NL}}}{\partial^2 t}. \tag{5.10}$$

La polarisation non linéaire apparait ici à droite de l'équation comme un terme source jouant un rôle d'excitation induisant une onde électromagnétique de même fréquence ω que $\boldsymbol{P_{NL}}(\boldsymbol{r},t)$.

Doublage de fréquence On s'intéresse plus précisément au cas où l'onde initiale à la fréquence ω se propage dans un milieu non linéaire et génère un signal à la fréquence 2ω. Si on fait l'approximation que le champ a la forme d'une onde plane quasi-monochromatique se propageant selon z, on peut représenter $\boldsymbol{E}(z,t)$ sous la forme :

$$\boldsymbol{E}(z,t) = \boldsymbol{E_1}(z,t) + \boldsymbol{E_2}(z,t) \tag{5.11}$$

où

$$\boldsymbol{E_i}(z,t) = \boldsymbol{e}A_i(z)e^{j(k_i z - \omega_i t)} + c.c. \tag{5.12}$$

où $A_i(z)$ est une enveloppe et où $k_i = n_i\omega_i/c$, et écrire la polarisation non linéaire comme :

$$\boldsymbol{P_{NL}}(z,t) = \boldsymbol{P_1}(z,t) + \boldsymbol{P_2}(z,t) \tag{5.13}$$

où

$$\boldsymbol{P_i}(z,t) = \boldsymbol{e_p}P_i(z)e^{-j\omega_i t} + c.c. \tag{5.14}$$

et

$$\boldsymbol{P_2}(z) = \epsilon_0\chi^{(2)}E_1^2(z) = \epsilon_0\chi^{(2)}A_1^2(z)e^{2jk_1 z}\boldsymbol{e_2} \tag{5.15}$$

Si on suppose que les enveloppes $A(z)$ varient lentement à l'échelle d'une longueur d'onde (approximation de l'enveloppe lentement variable) *i.e.* si $|\partial^2 A/\partial^2 z| \ll |k\partial A/\partial z|$, et $\partial^2 P_{NL}/\partial^2 t \simeq -\omega^2 P_{NL}$ et que le taux de conversion est assez faible pour considérer que $A_1(z) = A_1 = \text{cte}$ dans le milieu non linéaire, l'équation 5.10 pour le second harmonique devient alors

$$2jk_2\frac{\partial A_2}{\partial z} = -\frac{\omega_2^2}{c^2}\chi^{(2)}A_1^2 e^{j\Delta k z} \tag{5.16}$$

où $\Delta k = 2k_1 - k_2$ le vecteur d'onde de désaccord de phase.
En intégrant cette équation sur la longueur du cristal l_c, on obtient l'amplitude de l'harmonique 2 à la sortie :

$$A_2(l_c) = \frac{1}{2c}\frac{\omega_2}{n_2}\chi^{(2)}\frac{e^{j\Delta k l_c} - 1}{\Delta k}A_1^2. \tag{5.17}$$

L'intensité est donnée par $I_i = 2nc\epsilon_0|A_i^2|$, ce qui donne

$$I_2 = \frac{\omega_2^2\left(\chi^{(2)}\right)^2 l_c^2}{8n^3c^3\epsilon_0}I_1^2\,\mathrm{sinc}^2\left(\frac{\Delta k l_c}{2}\right) \tag{5.18}$$

Accord de phase On voit d'après l'équation 5.18 que pour optimiser le taux de conversion du doublage en fréquence, il est intéressant de minimiser Δk. La condition $\Delta k = 0$ s'appelle condition d'accord de phase, pour le doublage de fréquence, elle s'écrit $k_2 = 2k_1$. En multipliant cette équation par la constante de Planck $\hbar$, on s'aperçoit rapidement que cette condition d'accord de phase en optique non linéaire correspond d'un point de vue corpusculaire à la conservation de la quantité de mouvement lorsque deux photons de la pompe sont requis pour générer un photon du deuxième harmonique :

$$\hbar \boldsymbol{k_1} + \hbar \boldsymbol{k_1} = \hbar \boldsymbol{k_2} \tag{5.19}$$

On peut réécrire $k_2 = 2k_1$ sous la forme $n_2\omega_2 = 2n_1\omega_1$, et comme $\omega_2 = 2\omega_1$, la condition d'accord de phase devient $n_2 = n_1$. Afin de réaliser cet accord de phase, on utilise fréquemment des milieux biréfringents. La biréfringence est la propriété physique d'un matériau dans lequel la lumière se propage de façon anisotrope. Dans un milieu biréfringent, l'indice de réfraction n'est pas unique, il dépend de la direction de propagation et de la polarisation de l'onde lumineuse. Pour expliciter cette condition de conservation du vecteur d'onde, seule la susceptibilité linéaire $\chi^{(1)}$ est à prendre en compte. L'expression du vecteur déplacement électrique $\boldsymbol{D}$ s'écrit :

$$\boldsymbol{D} = \epsilon_0 \boldsymbol{E} + \boldsymbol{P} = \epsilon \boldsymbol{E} \tag{5.20}$$

où $\epsilon = \epsilon_0(1 + \chi^{(1)})$ est le tenseur de permittivité diélectrique du milieu. Dans un milieu transparent, ce tenseur est diagonalisable et ses axes propres X, Y et Z définissent les axes principaux du cristal. On a alors

$$\epsilon = \begin{pmatrix} n_X^2 & 0 & 0 \\ 0 & n_Y^2 & 0 \\ 0 & 0 & n_Z^2 \end{pmatrix}. \tag{5.21}$$

Pour qu'une onde puisse se propager sans déformation dans un tel milieu, sa vitesse de phase ne peut prendre que deux valeurs possibles : $v'_\phi = c_0/n'$ ou $v''_\phi = c_0/n''$ correspondant à deux vecteurs déplacement possibles (notons $\vec{d'}$ et $\vec{d''}$ leurs vecteurs unitaires respectifs). Les directions $\vec{d'}$ et $\vec{d''}$ donnent celles des axes de l'ellipse formée par l'intersection du plan perpendiculaire à la direction de propagation de l'onde $\vec{k}$ (soit le plan d'onde) avec la surface de l'ellipsoïde des indices d'équation :

$$\frac{X^2}{n_X^2} + \frac{Y^2}{n_Y^2} + \frac{Z^2}{n_Z^2} = 1 \tag{5.22}$$

Par souci de lisibilité de schéma, cette surface est usuellement représentée dans le cas particulier d'un cristal uniaxe positif (fig. 5.13). Notons aussi que le plan tangent à l'ellipsoïde des indices est le plan ($\boldsymbol{E}$,$\boldsymbol{H}$). Le vecteur de Poynting est donc normal à l'ellipsoïde des indices.

Cas du cristal de BBO Le BBO est un cristal biréfringent uniaxe négatif dans lequel on a $n_X = n_Y = n_o$ (indice ordinaire) et $n_Z = n_e$ (indice extraordinaire) avec $n_e < n_o$. Pour une onde se propageant suivant l'axe OZ les deux composantes

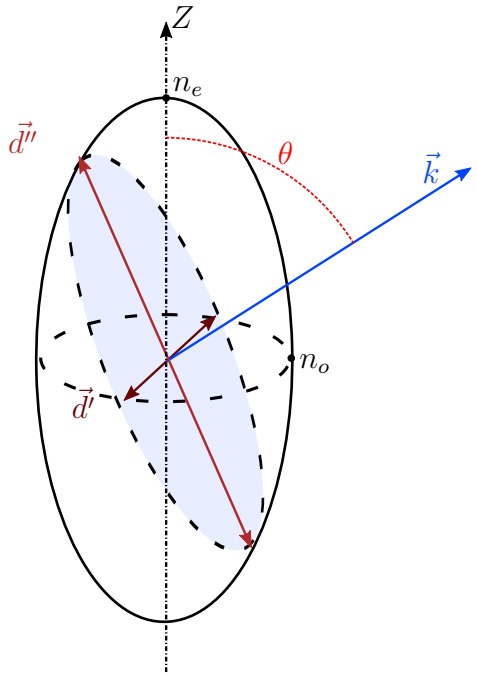

Fig 5.13: *Représentation de l'ellipsoïde des indices coupée par un plan perpendiculaire à la direction du vecteur d'onde. Cas correspondant à un milieu uniaxe positif.*

orthogonales de $\boldsymbol{D}$ voient le même indice n_o. Néanmoins, si l'onde se propage selon une direction $\vec{k}$, formant un angle θ avec l'axe OZ, on voit (fig. 5.13) que dans ce cas, les composantes $\boldsymbol{D}(\vec{d'})$ et $\boldsymbol{D}(\vec{d''})$ verront des indices n_o et $n(\theta)$ respectivement.

Pour obtenir la condition d'accord de phase dans un tel milieu il faut choisir θ de telle sorte que $n(2\omega,\theta) = n_o(\omega)$. Afin de déterminer l'angle permettant de réaliser cette condition, on représente généralement la surface des indices (fig. 5.14), et non plus l'ellipsoïde des indices, dans laquelle le cercle représente une coupe de la sphère d'indice $n_o(\omega)$ pour une onde ordinaire (o) à la fréquence de pompe ω et dans laquelle l'ellipse représente une coupe de l'ellipsoïde des indices ($n_e(2\omega)$,$n_o(2\omega)$) pour une onde à la fréquence du deuxième harmonique 2ω. Cette représentation permet aisément de déterminer l'angle d'accord de phase θ_{ap} en fonction de $n_o(\omega)$, $n_o(2\omega)$, $n_e(\omega)$ et $n_e(2\omega)$, et on obtient :

$$\sin^2(\theta_{ap}) = \frac{1/n_o^2(\omega) - 1/n_o^2(2\omega)}{1/n_e^2(2\omega) - 1/n_o^2(2\omega)}. \tag{5.23}$$

Les différents indices du cristal de BBO aux différentes longueurs d'ondes utilisées (626 nm et 313 nm) sont donnés ci-dessous [94] :

$$\begin{aligned} n_o(\omega) &= 1{,}6684 \\ n_o(2\omega) &= 1{,}7230 \\ n_e(\omega) &= 1{,}5509 \\ n_e(2\omega) &= 1{,}5900 \end{aligned} \tag{5.24}$$

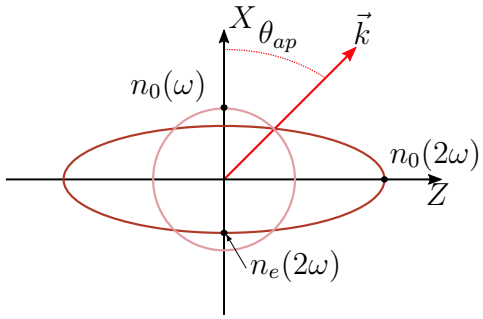

Fig 5.14: *Surface des indices et accord de phase dans le plan XZ dans un cristal biréfringent uniaxe négatif. Le cercle rose représente une coupe de la sphère d'indice $n_o(\omega)$ dans le plan XZ, l'ellipse marron représente une coupe de l'ellipsoïde des indices ($n_e(2\omega)$,$n_o(2\omega)$) dans le plan XZ, θ_{ap} est l'angle d'accord de phase et $\vec{k}$ est le vecteur d'onde de l'onde incidente.*

On trouve, in fine, pour notre cristal de BBO un angle d'accord de phase de 38,3°. Notons qu'afin d'éviter les pertes par réflexion qui entraîneraient une baisse de la surtension dans la cavité (voir section 5.3.2), le cristal est taillé à incidence de Brewster pour l'onde à 626 nm qui se propage selon l'axe ordinaire du cristal. On a donc $\theta_B = \arctan(n_o(\omega)) = 59\,°$.

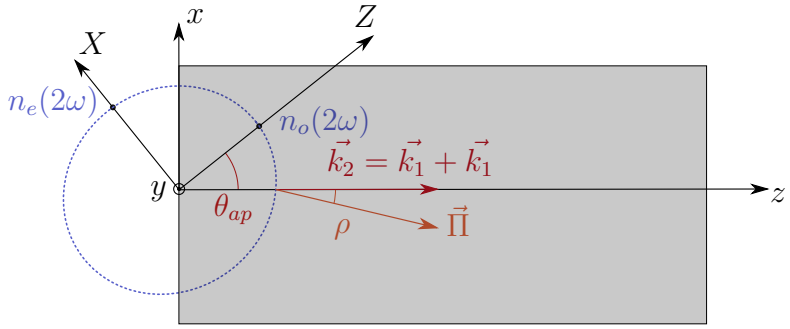

Fig 5.15: *Coupe du cristal dans le plan (Oxz) du cristal de BBO. L'axe Z est l'axe optique du cristal, l'axe z indique la direction de propagation des ondes, $\vec{k}_1$ et $\vec{k}_2$ sont respectivement le vecteur d'onde de l'onde incidente et le vecteur d'onde de l'onde doublée, θ_{ap} et ρ sont respectivement l'angle d'accord de phase et l'angle de double réfraction, $\vec{\Pi}$ représente le vecteur de Poynting et les pointillés bleus représentent la surface des indices pour l'onde à 2ω.*

Angle de double réfaction Dans un milieu biréfringent, il existe un effet à prendre en compte : l'énergie ne se propage pas dans la même direction que l'onde. En effet, le vecteur de Poynting $\boldsymbol{\Pi} = \boldsymbol{E} \times \boldsymbol{H}$ n'est pas colinéaire au vecteur d'onde $\boldsymbol{k} = \boldsymbol{D} \times \boldsymbol{H}$. L'angle formé par les vecteurs $\boldsymbol{\Pi}$ et $\boldsymbol{k}$ est appelé angle de double réfraction ρ (ou en anglais *walk-off*). Cet effet a deux conséquences. Premièrement il limite la distance dans le cristal sur laquelle l'onde à 2ω est amplifiée. Deuxièmement le faisceau en sortie devient elliptique. Pour déterminer cet angle ρ on représente une coupe du cristal (fig. 5.15) dans laquelle on fait apparaitre l'axe optique du cristal, la surface des indices, le vecteur de propagation de l'onde et le vecteur de Poynting, perpendiculaire à la surface des indices. On peut alors déterminer l'angle de double réfractionρ géométriquement et on trouve :

$$\rho = \arctan\left[\frac{n_o^2(2\omega)}{n_e^2(2\omega)}\tan\theta_{ap}\right] - \theta_{ap} = 80{,}0\,\mathrm{mrad} \tag{5.25}$$

Caractéristiques du faisceau doublé On s'intéresse aux caractéristiques du faisceau doublé. On a vu que son vecteur d'onde et son vecteur de Poynting n'ont pas la même direction (fig. 5.15). Le champ électrique est orthogonal à $\vec{\Pi}$ alors que les plans d'onde restent eux orthogonaux à $\vec{k_2}$. Le faisceau se déplace donc de travers et acquiert une forme elliptique. Calculons les rayons dans chaque plan.

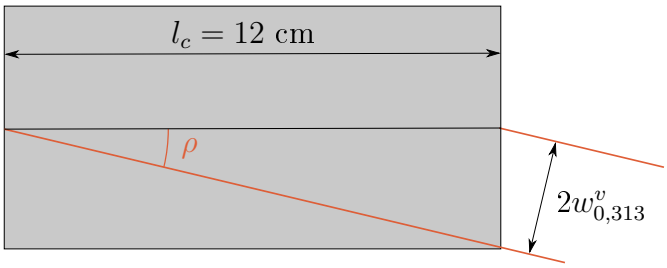

Fig 5.16: *Rayon du faisceau doublé dans le plan vertical.*

Pour calculer le rayon dans le plan vertical $w^v_{0,313}$ on considère que chaque point du cristal émet de la lumière dans la direction $\vec{\Pi}$ (fig. 5.16), et on tient compte du fait que ρ est petit. On a donc :

$$w^v_{0,313} = \frac{l_c\rho}{2} \tag{5.26}$$

ce qui dans notre cas donne $w^v_{0,313} = 480\,\mu$m. Dans le plan horizontal il n'y a pas d'effet dû à la double réfraction. Le champ électrique à la fréquence double E_2 étant proportionnel au carré du champ électrique incident E_1, et si on appelle $w^h_{0,626}$ le rayon horizontal de l'onde incidente, on a simplement :

$$w^h_{0,313} = \frac{w^h_{0,626}}{\sqrt{2}} \tag{5.27}$$

On verra dans la suite que dans notre cas $w^h_{0,626} = 31{,}7\,\mu$m, ainsi $w^h_{0,313} = 22{,}4\,\mu$m.

Le faisceau est donc extrêmement elliptique en sortie de la cavité. On choisit donc un jeu de lentilles cylindriques pertinent afin de collimater le faisceau et de le rendre le plus rond possible avant de l'envoyer vers les ions.

Taux de conversion Une fois la direction de propagation et les polarisations des champs fixés, on peut revenir à l'expression vectorielle de la polarisation non linéaire $\boldsymbol{P}(2\omega)$ et montrer que la composante extraordinaire du vecteur polarisation s'écrit [95] :

$$P^e(2\omega) = 2\epsilon_0 d_{eff} E_o^2(\omega) \tag{5.28}$$

avec,

$$d_{eff} = d_{31}\sin(\theta_{ap} + \rho) + d_{22}\cos(\theta_{ap} + \rho) \tag{5.29}$$

où d_{ij} sont les éléments du tenseur d définit comme $\chi^{(2)} \equiv 2d$. On peut trouver les valeurs des coefficients de d dans le logiciel SNLO (Select Non-linear Optics) [96]. On trouve $d_{eff} = 1{,}67\,\mathrm{pm/V}$. En reprenant l'équation 5.18 que l'on réécrit avec la condition d'accord de phase $\Delta k = 0$ et en prenant la définition de la puissance lumineuse $\mathcal{P}_i = aI_i$, où a est la section du faisceau laser on obtient l'expression du taux de conversion en puissance :

$$\frac{\mathcal{P}_2}{\mathcal{P}_1^2} = \alpha = \frac{\omega_2^2 d_{eff}^2}{2n^3c^3\epsilon_0}\frac{l_c^2}{a} = K\frac{l_c^2}{a}. \tag{5.30}$$

On trouve dans notre cas $K = 4{,}55.10^{-8}\,\mathrm{W}^{-1}$.

Ce modèle est simplifié puisqu'en réalité les ondes ne sont pas planes mais au contraire focalisées au niveau du cristal. On peut comprendre de façon intuitive qu'il existe un optimum de focalisation. En effet, si on focalise beaucoup, on augmente l'intensité lumineuse ce qui favorise les interactions non linéaires mais on n'utilise qu'une petite partie du cristal. En revanche, si on focalise trop peu, on utilise une grande partie du cristal mais l'intensité chute. Cet optimum a été calculé par Boyd et Kleinman [97] dans le cas où le cristal est à incidence normale. Pour obtenir le taux de conversion, il suffit de remplacer dans la formule 5.30, l_c^2/a par $\frac{k_1 l_c}{\pi}h(B,\xi)$, où h est calculé numériquement, $B = \frac{\rho\sqrt{l_c k_1}}{2}$ est un paramètre lié à la double réfraction et $\xi = \frac{l_c}{2z_R}$, où $z_R = \frac{\pi w_0^2}{\lambda}$ est la longueur Rayleigh de l'onde gaussienne incidente dans le cristal. Pour chaque valeur de B la courbe $h(B,\xi)$ présente un maximum en $\xi_{opt}(B)$ valant $h_m(B) = h(B,\xi_{opt}(B))$. Dans l'article de Zondy et al. [98] on trouve une formule empirique donnant $\xi_{opt}(B)$ et $h_m(B)$:

$$\xi_{opt}(B) = 2.7517 + \frac{0.62204}{1 + 0.39218B} + \frac{2.49362}{1 + 3.2012B^2} \tag{5.31}$$

et

$$h_m(B) = \frac{0.27163}{1 + 0.339B} + \frac{1.0517}{1 + 1.00008B^2} - \frac{0.25563}{1 + 0.59847B^3} \tag{5.32}$$

Dans notre cristal $B = 17{,}9$ à $626\,\mathrm{nm}$. On a donc $h_m = 0{,}04$ et $\xi_{opt} = 2{,}83$, ce dernier nous permet de déterminer le waist optimal du faisceau dans le cristal qui optimise la conversion, on trouve $w_{opt} = 20{,}5\,\mu\mathrm{m}$. Selon Boyd et Kleinman le taux de conversion à incidence normale vaut donc :

$$\alpha_{B\&K} = K\frac{k_1 l_c}{\pi}h_m. \tag{5.33}$$

Incidence de Brewster Cette formule ne peut pas être appliquée directement dans notre cas. En effet, notre cristal est taillé à incidence de Brewster afin d'éviter les pertes par réflexion qui entraîneraient une baisse de la surtension de la cavité. Cet angle d'incidence rend le faisceau elliptique, ce qui est à prendre en compte dans le calcul du taux de conversion. Dans sa thèse, S. Bourzeix [95] a montré que le taux de conversion pour un cristal à incidence de Brewster est :

$$\alpha_{th} = \alpha_{B\&K,Brewster} = \frac{\alpha_{B\&K}}{n_o(\omega)} = 7{,}25.10^{-5}\,\mathrm{W}^{-1} \tag{5.34}$$

Le tableau 5.1 récapitule les propriétés du cristal de BBO dans notre expérience. Le taux de conversion en simple passage étant très faible, on construit une cavité de surtension autour du cristal afin d'amplifier la puissance du faisceau pompe et donc d'amplifier la génération du second harmonique.

Cristal de BBO	
Angle d'accord de phase	$\theta_{ap} = 38{,}3\,°$
Angle de Brewster	$\theta_B = 59\,°$
Angle de double réfraction	$\rho = 80{,}0\,\mathrm{mrad}$
Susceptibilité effective	$d_{eff} = 1{,}67\,\mathrm{pm/V}$
K	$K = 4{,}55.10^{-8}\,\mathrm{W}^{-1}$
Paramètre de Boyd et Kleinman	$h_m(B) = 0{,}04$
Waist optimal	$w_{opt} = 20{,}5\,\mu\mathrm{m}$
Taux de conversion théorique	$\alpha_{th} = 7{,}25.10^{-5}\,\mathrm{W}^{-1}$

Tableau 5.1: *Récapitulatif des propriétés du cristal de BBO pour le doublage de* 626 nm *à* 313 nm. *Le cristal est taillé à incidence de Brewster et mesure* $l_c = 12\,\mathrm{mm}$ *de long.*

5.3.2 Cavité de surtension

La cavité de longueur totale $L = 18\,\mathrm{cm}$ (voir figure 5.17) est une cavité en anneau de type Fabry-Perot constituée de quatre miroirs M_1 à M_4. L'onde incidente est couplée à la cavité par le miroir M_1 de transmission T_1. Les trois autres miroirs sont totalement réfléchissants pour l'onde incidente et transparents à 313 nm. Les miroirs M_1 et M_2 sont plans tandis que M_3 et M_4 sont sphériques de rayon de courbure $R = 30\,\mathrm{mm}$ et séparés d'une distance l afin de focaliser la lumière dans le cristal de longueur $l_c = 12\,\mathrm{mm}$. Le petit miroir M_2 est monté sur une céramique piézoélectrique afin de contrôler la longueur de la cavité. Les 4 miroirs sont montés sur des montures de type $\theta\phi z$, les angles θ et ϕ permettant de fermer la cavité. La translation z est importante pour les miroirs M_2 et M_3 car elle permet d'ajuster la focalisation du faisceau dans le cristal. De plus, le miroir M_4 est traité afin d'être totalement réfléchissant à 626 nm et transparent à 313 nm. Nous avons mesuré un coefficient de transmission à 313 nm pour M_4 de $R_4^{313} = 99{,}8\,\%$.

Le cristal est taillé de telle sorte que lorsque le faisceau se propage dans le plan horizontal du cristal, il se propage faisant un angle très proche de $\theta_{ap} = 38{,}3°$ avec l'axe optique du cristal. L'onde incidente a une polarisation horizontale, et le cristal

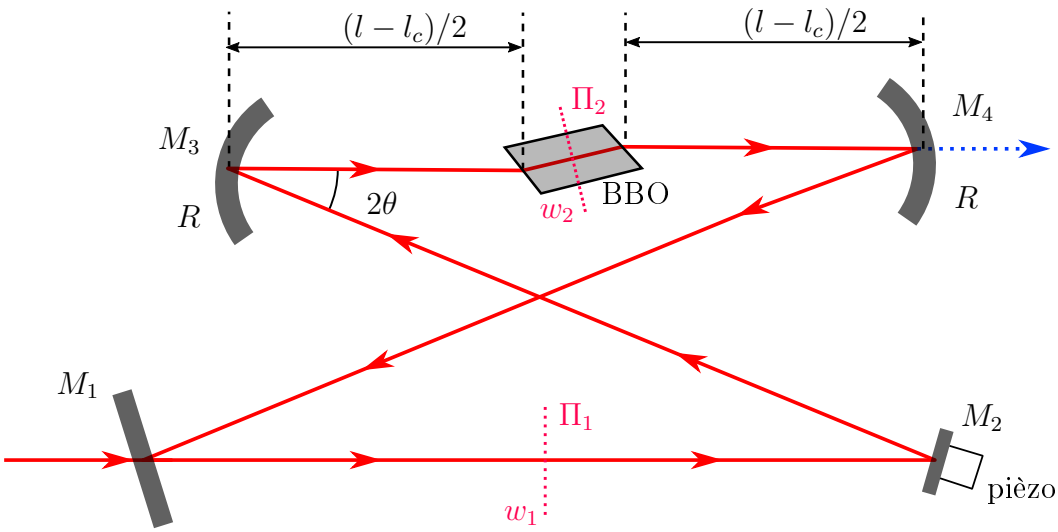

Fig 5.17: *Schéma de la cavité en anneau. Elle est constituée de deux miroirs plans M_1 et M_2, de deux miroirs sphériques identiques M_3 et M_4, de rayons de courbure R, séparés d'une distance l et d'un cristal de BBO de longueur l_c. Les pointillés roses représentent les plans de symétrie de la cavité et donc la position des waists. Les flèches rouges représentent le trajet de la lumière à* 626 nm *dans la cavité. La flèche bleue représente le faisceau à* 313 nm *sortant de la cavité par le miroir M_4.*

est donc taillé à incidence de Brewster dans ce plan. Le cristal est monté sur une monture 4-axes permettant entre autres une rotation dans le plan horizontal afin de modifier l'angle d'incidence sur le cristal et de se placer précisément à l'incidence de Brewster et une rotation autour de l'axe (Oy) afin de se placer exactement à l'angle d'accord de phase pour optimiser la puissance de l'harmonique 2.

Le couplage d'un faisceau laser avec une cavité se traduit par deux couplages puisqu'il s'agit de faire coïncider le mode spatial du faisceau laser avec le mode de la cavité (couplage des modes transverses) et de faire coïncider la fréquence laser avec l'un des modes de résonance longitudinaux de la cavité (couplage des modes longitudinaux) en jouant finement sur la longueur de la cavité grâce à la céramique piézoélectrique.

a. Modes transverses

Faisceau Gaussien Les propriétés du faisceau Gaussien dans la cavité peuvent être analysées à l'aide du formalisme des matrices ABCD [99]. Pour décrire un faisceau gaussien se propageant selon un axe z, on introduit le paramètre complexe $q(z)$, dépendant de deux paramètres réels d'un faisceau gaussien, le rayon de courbure $R(z)$ et le rayon du faisceau $w(z)$, et dont la dépendance est :

$$\frac{1}{q(z)} = \frac{1}{R(z)} - i\frac{\lambda}{\pi w(z)^2} \tag{5.35}$$

où

$$w(z)^2 = w_0^2 \left[1 + \left(\frac{\lambda z}{\pi w_0^2} \right)^2 \right] \tag{5.36}$$

et

$$R(z) = z \left[1 + \left(\frac{\pi w_0^2}{\lambda z} \right)^2 \right]. \tag{5.37}$$

Lors de sa propagation, le faisceau Gaussien se contracte en un point où le rayon est minimum $w = w_0$, que nous appellerons "col" (waist en anglais) et où le front d'onde est plan $R \to \infty$. En ce point le paramètre q est imaginaire pur et vaut

$$q_0 = i \frac{\pi w_0^2}{\lambda}. \tag{5.38}$$

Le paramètre complexe q est un outil très puissant permettant de décrire le faisceau Gaussien dans son entièreté. De plus le formalisme des matrices ABCD permet de décrire l'évolution du paramètre q lors de sa propagation ou bien lorsqu'il traverse un élément optique.

Matrices ABCD Dans ce formalisme, un élément optique peut être décrit par une matrice M, avec

$$M = \begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix} \tag{5.39}$$

Notons que $det(M) = n_1/n_2$, où n_1 est l'indice du milieu en entrée du système optique et n_2 l'indice du milieu en sortie. Un faisceau caractérisé par $q(z_1)$ à la position z_1 est transformé après son passage à travers un élément optique M en un faisceau caractérisé par $q(z_2)$ à la position z_2 tel que :

$$q(z_2) = \frac{Aq(z_1) + B}{Cq(z_1) + D} \tag{5.40}$$

Pour décrire un faisceau traversant plusieurs éléments optiques (dans l'ordre, M_1, M_2,..., M_n), il suffit de reprendre l'équation ci-dessus avec A, B, C et D les éléments de la matrice produit

$$M_{tot} = M_n M_{n-1} ... M_2 M_1. \tag{5.41}$$

Stabilité de la cavité Une cavité en anneau n'est rien d'autre qu'une succession d'éléments optiques. On peut donc la décrire grâce au formalisme des matrices ABCD comme une matrice M_T où M_T est le produit matriciel des différents éléments rencontrés en partant d'un point z_1 et en revenant à ce même point. La cavité est stable si [99]:

$$-1 \leq \frac{1}{2}(A + D) \leq 1 \tag{5.42}$$

où A, B, C et D sont les éléments de la matrice M_T.

Le mode dans la cavité Pour une cavité, on peut reprendre l'équation 5.40, avec $q(z_1) = q(z_2) = q$, qui devient :

$$\frac{1}{q^2} + \frac{(A-D)}{B}\frac{1}{q} - \frac{C}{B} = 0 \tag{5.43}$$

que l'on peut résoudre pour trouver :

$$\frac{1}{q} = \frac{D-A}{2B} - \frac{i}{2B}\sqrt{4-(A+D)^2}, \tag{5.44}$$

ce qui donne comme rayon w,

$$w^2 = \frac{2\lambda B}{\pi\sqrt{4-(A+D)^2}} \tag{5.45}$$

Notons que notre cavité possède deux plans de symétries Π_1 et Π_2 (fig. 5.17), ce qui indique que notre cavité, si elle est stable, va posséder deux cols, que l'on va appeler w_1 et w_2, se situant respectivement en Π_1 et Π_2.

Astigmatisme Nous avons vu dans la partie précédente, que le cristal taillé à incidence de Brewster introduit de l'astigmatisme, c'est à dire qu'il rend le faisceau elliptique. Les miroirs sphériques à incidence non normale introduisent eux aussi de l'astigmatisme. Il faut donc décomposer l'étude de la cavité selon deux plans : le plan tangentiel, qui est dans notre expérience le plan horizontal et le plan sagittal, qui est le plan vertical. Par la suite, on les repèrera avec les indices respectifs *tan* et *sag*.

Le tableau 5.2 donne une liste des différentes matrices ABCD dont on se servira par la suite dans notre cavité, on trouve la plupart de ces matrices dans la littérature [100], néanmoins il est difficile de trouver la matrice de la traversée d'un dioptre à incidence non normale, c'est pourquoi nous avons décidé d'établir l'expression de cette matrice en annexe A.

Élément optique	Matrice plan tangentiel	Matrice plan sagittal
Propagation sur une distance d	$M_p^{tan}(d)=\begin{pmatrix}1 & d\\ 0 & 1\end{pmatrix}$	$M_p^{sag}(d)=\begin{pmatrix}1 & d\\ 0 & 1\end{pmatrix}$
Passage d'un milieu d'indice n_1 à un milieu d'indice n_2 à incidence de Brewster	$M_t^{tan}(n_1,n_2)=\begin{pmatrix}\frac{n_2}{n_1} & 0\\ 0 & \left(\frac{n_1}{n_2}\right)^2\end{pmatrix}$	$M_t^{sag}(n_1,n_2)=\begin{pmatrix}1 & 0\\ 0 & \frac{n_1}{n_2}\end{pmatrix}$
Réflexion sur un miroir sphérique de rayon R faisant un angle θ avec la normale	$M_m^{tan}(R,\theta)=\begin{pmatrix}1 & 0\\ \frac{-2}{R\cos\theta} & 1\end{pmatrix}$	$M_m^{sag}(R,\theta)=\begin{pmatrix}1 & 0\\ \frac{-2\cos\theta}{R} & 1\end{pmatrix}$

Tableau 5.2: *Matrices ABCD des différents éléments présents dans la cavité.*

En prenant le centre du cristal comme point de départ, on peut écrire les matrices après un tour dans la cavité. Pour chacun des deux plans, on a :

$$\begin{aligned} M_{tot}^{tan} =& M_p^{tan}(l_c/2)\cdot M_t^{tan}(1,n_0)\cdot M_p^{tan}((l-l_c)/2)\cdot M_m^{tan}(R,\theta)\cdot M_p^{tan}(L-l)\\ &\cdot M_m^{tan}(R,\theta)\cdot M_p^{tan}((l-l_c)/2)\cdot M_t^{tan}(n_0,1)\cdot M_p^{tan}(l_c/2) \end{aligned} \tag{5.46}$$

et

$$\begin{aligned} M_{tot}^{sag} =& M_p^{sag}(l_c/2)\cdot M_t^{sag}(1,n_0)\cdot M_p^{sag}((l-l_c)/2)\cdot M_m^{sag}(R,\theta)\cdot M_p^{sag}(L-l)\\ &\cdot M_m^{sag}(R,\theta)\cdot M_p^{sag}((l-l_c)/2)\cdot M_t^{sag}(n_0,1)\cdot M_p^{sag}(l_c/2). \end{aligned} \tag{5.47}$$

Nous avons à notre disposition trois paramètres à choisir, L la longueur totale de la cavité, θ l'angle d'incidence sur les miroirs sphériques et l la distance entre ces miroirs (R le rayon de courbure des miroirs sphériques M_2 et M_3 étant imposé par le choix des miroirs). Afin de fixer ces paramètres, plusieurs critères sont à prendre en compte, tout d'abord, nous avons vu dans la partie précédente, qu'il existe un waist optimal pour l'efficacité de doublage $w_{opt} = 20{,}5\,\mu$m et l'équation 5.42 nous donne un critère de stabilité. La stabilité de la cavité dépend très faiblement de L et fortement de la longueur l. On introduit donc la notion de zone de stabilité, définie comme les valeurs de l permettant de rendre la cavité stable. Il existe donc deux zones de stabilité, une dans le plan horizontal l'autre dans le plan vertical. On peut alors choisir l'angle θ afin de faire coïncider ces deux zones de stabilité (argument que l'on trouve dans la littérature sous le nom de compensation d'astigmatisme) ce qui a en plus comme effet, de rendre le mode de la cavité quasiment rond entre les deux miroirs plans. Il suffit donc d'injecter un faisceau rond dans la cavité, ce qui est commode puisque l'on travaille avec un faisceau provenant d'une fibre

optique. $L = 18\,\text{cm}$ est choisi de manière à pouvoir placer les différents éléments opto-mécaniques dans la cavité.

La figure 5.18 montre la dépendance des waists w_1 et w_2 par rapport à la distance l entre les deux miroirs et dans les deux plans. On trouve avec $R = 30\,\text{mm}$ que les paramètres de la cavité doivent être : $\theta = 19{,}5\,°$ et $l = 4{,}15\,\text{cm}$. Cela donne $w_2^{sag} = 21{,}7\,\mu\text{m}$, $w_2^{tan} = 31{,}7\,\mu\text{m}$ et $w_1^{sag} = w_1^{tan} = 102\,\mu\text{m}$. On trace aussi les rayons des faisceaux tangentiel et sagittal dans la cavité, entre les deux plans de symétrie Π_1 et Π_2. Lors du passage entre le cristal et l'air, le rayon du faisceau tangentiel semble discontinu. En réalité cela provient du changement dans la direction de propagation du faisceau lors de la traversée du cristal.

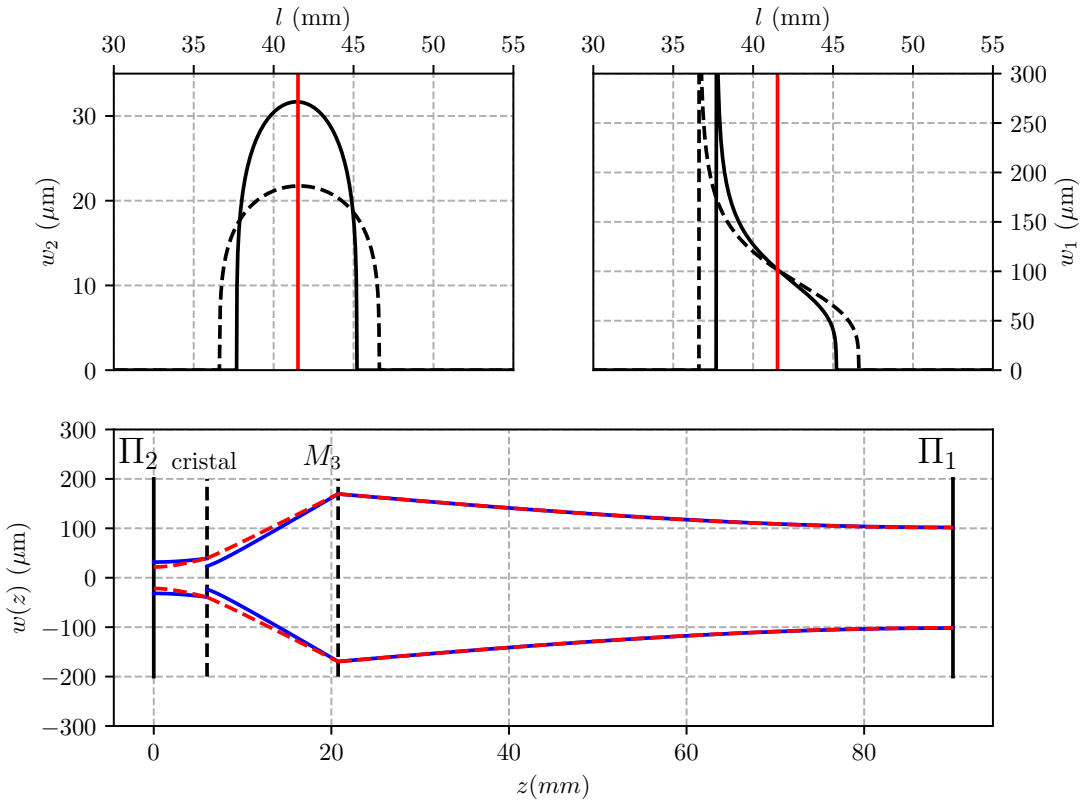

Fig 5.18: *Haut: le waist w_2 (gauche) et w_1 (droite) dans le plan tangentiel (trait plein) et dans le plan sagittal (pointillé) en fonction de la distance l entre les deux miroirs sphériques. Bas : propagation du faisceau entre les deux plans de symétrie de la cavité dans le plan tangentiel (bleu) et dans le plan sagittal (rouge).*

b. Modes longitudinaux

Champs électriques Écrivons les relations entre les différents champs électriques (fig. 5.19) au niveau du miroir M_1 de coefficients de réflexion et de transmission (r_1,t_1), considéré sans pertes ($t_1^2 + r_1^2 = 1$). On note Φ le déphasage introduit par la cavité et t' un facteur permettant de prendre en compte les autres pertes dans la cavité (dues aux autres miroirs et au cristal),

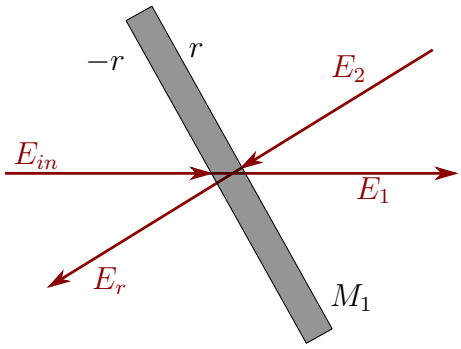

Fig 5.19: *Champs électriques incidents et réfléchis sur le miroir coupleur M_1.*

$$\begin{cases} E_r = t_1 E_2 - r_1 E_i \\ E_1 = t_1 E_{in} + r_1 E_2 \end{cases} \quad \text{et} \quad E_2 = t' e^{i\Phi} E_1$$

On déduit de ces équations la surtension (build-up en anglais) de la cavité, soit le rapport de la puissance dans la cavité ($\mathcal{P}_1$) sur la puissance en entrée de la cavité ($\mathcal{P}_{in}$) :

$$\mathcal{S} = \frac{\mathcal{P}_1}{\mathcal{P}_{in}} = \frac{|E_1|^2}{|E_{in}|^2} = \frac{t_1^2}{(1 - r_1 t')^2} \frac{1}{1 + \left(\frac{2\mathcal{F}}{\pi}\right)^2 \sin^2(\Phi/2)} \tag{5.48}$$

et le taux d'injection $1 - \eta$, où η est le rapport de la puissance réfléchie par la cavité ($\mathcal{P}_r$) sur la puissance en entrée de la cavité ($\mathcal{P}_{in}$) :

$$\eta = \frac{\mathcal{P}_r}{\mathcal{P}_{in}} = \frac{|E_r|^2}{|E_{in}|^2} = \frac{1}{(1 - r_1 t')^2} \frac{r_1^2 + t'^2 - 2 r_1 t' \cos(\phi)}{1 + \left(\frac{2\mathcal{F}}{\pi}\right)^2 \sin^2(\Phi/2)} \tag{5.49}$$

où $\mathcal{F} = \dfrac{\pi\sqrt{r_1 t'}}{1 - r_1 t'}$ est la finesse de la cavité.

La fonction 5.48 présente un maximum pour $\Phi/2 = m\pi$, où m est un entier. En utilisant le fait que $\phi = \frac{2\pi}{\lambda} L$, on trouve comme condition de résonance :

$$\nu_{laser} = m \frac{c}{L} \tag{5.50}$$

où L est la longueur de la cavité, ν_{laser} la fréquence du laser. Le rapport $\frac{c}{L}$ est défini comme l'intervalle spectral libre (ISL) de la cavité. Le principe est ensuite d'asservir la cavité à l'aide de la céramique piézoélectrique afin de faire coïncider la fréquence de résonance avec la fréquence du laser.

Asservissements

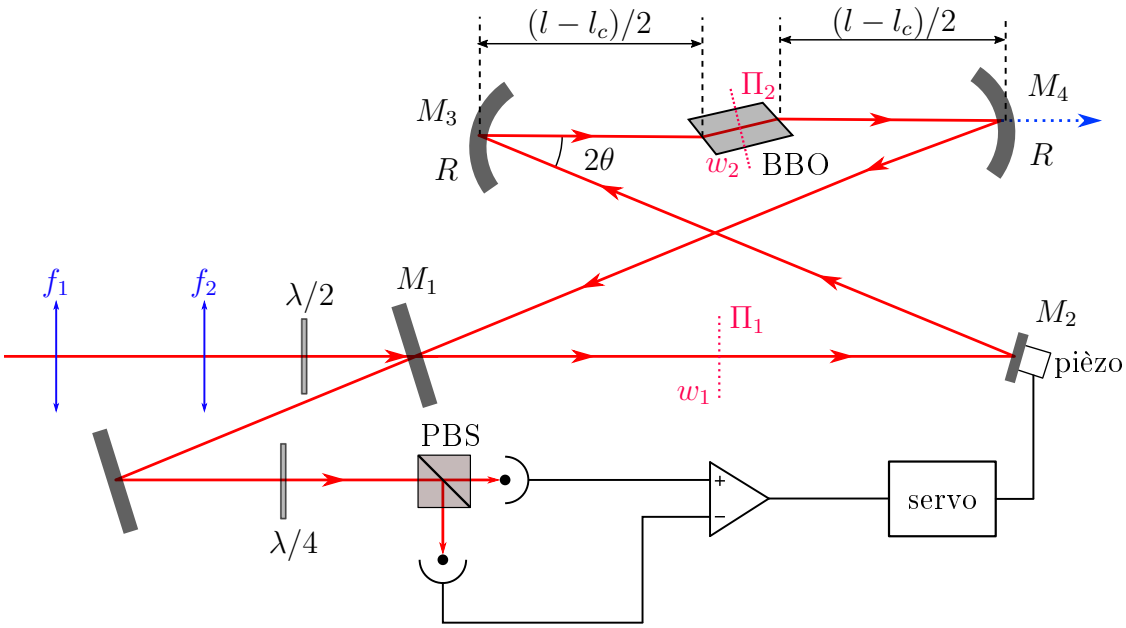

Fig 5.20: *Schéma de l'asservissement de la cavité de doublage. $\lambda/2$: lame demi-onde, $\lambda/4$: lame quart d'onde, PBS : cube séparateur de polarisation.*

Le dispositif expérimental décrit figure 5.20 et permettant de créer un signal d'erreur avec la méthode proposée par Hänsch et Couillaud [101] est composé d'une lame demi-onde, de la cavité résonante et d'une mesure d'ellipticité ($\lambda/4$ + cube polariseur). Cette méthode repose sur l'analyse de l'ellipticité de la polarisation de l'onde après réflexion sur la cavité.

Pour cela, la polarisation de l'onde incidente est légèrement tournée par rapport à sa direction initiale à l'aide de la lame demi-onde, on peut donc décomposer la polarisation résultante suivant deux axes orthogonaux ($\parallel$ et $\perp$) que l'on choisira identiques à ceux du cristal. Dans la cavité, le cristal doubleur est taillé à l'angle de Brewster, ainsi, la composante $\perp$ voit une cavité avec une très grande perte, et, en première approximation, est complètement réfléchie par la cavité. La composante $\parallel$ est déphasée d'une quantité qui dépend du désaccord de la cavité. De ce fait, la polarisation de l'onde réfléchie par la cavité est elliptique. L'ellipsomètre qui mesure cette ellipticité est composé d'une lame quart d'onde (dont les axes sont tournés à 45° des axes du cube) et d'un cube séparateur de polarisation. Si l'onde est résonante avec la cavité, le déphasage introduit est 0 $[2\pi]$ ce qui signifie que la polarisation transmise par la cavité est en phase avec l'onde incidente et donc que la combinaison des ondes réfléchies et transmises a une polarisation linéaire, qui après la lame quart-d'onde devient circulaire pour ensuite être séparée en parties égales par le cube. On aboutit donc à des signaux identiques sur les deux photo-diodes placées après le cube et donc un signal d'erreur nul. On peut montrer que le signal obtenu a bien une forme dispersive et qu'il s'écrit sous la forme :

$$\mathcal{S}_{\text{erreur}} = \sin(4\alpha)\frac{4r_1t_1^2t'\sin(\Phi)}{1 + r_1^2t'^2 - 2r_1t'\cos(\Phi)}I_0 \tag{5.51}$$

où α est l'angle entre la polarisation de l'onde incidente et la lame demi-onde.

Ce signal est ensuite envoyé vers un correcteur à $-10\,\mathrm{dB/dec}$ dont le schéma et la fonction de transfert sont donnés en annexe B. Le signal de correction ainsi obtenu est appliqué sur la céramique piézoélectrique.

Le montage comporte aussi deux asservissements en température, le cristal de BBO étant légèrement hygroscopique, le premier permet de maintenir la température du cristal à 50 °C afin qu'il n'absorbe pas l'humidité environnante, le second permet de maintenir la cavité à 28 °C afin d'éviter les dérives lentes de longueur de cavité. En effet, une variation ΔT de 1 °C de la température produit une variation de L donnée par $\Delta L = \alpha_{Dural} L \Delta T$ où α_{Dural} est le coefficient de dilatation de la cavité. Pour le Dural, $\alpha_{Dural} = 23.10^{-6}\,°\mathrm{C}^{-1}$ et donc $\Delta L = 3{,}9.10^{-5} \simeq 6\lambda_{626} = 12\lambda_{313}$. La céramique piézoélectrique Thorlabs AE0203D04F que l'on utilise possède un déplacement maximal de $\Delta d = 4{,}6\,\mu\mathrm{m}$ soit $\Delta d = 7\lambda_{626}$. Une variation de 1 °C ne peut donc pas être corrigée par la céramique au risque de l'amener en butée d'où l'importance de stabiliser en température la cavité.

Les deux asservissements de température sont de simples proportionnels. Un capteur de température (circuit LM35 pour la cavité et thermistance CTN pour le cristal BBO) donnent des mesures des températures. Elles sont comparées à une consigne. Le signal d'erreur est utilisé pour commander de manière proportionnelle des courants qui traversent des résistances et chauffent la cavité et le cristal. Grâce à ces contrôles de température l'asservissement de la cavité tient sans problème une journée.

c. Calcul de l'efficacité de la cavité de surtension

Le taux de conversion α introduit précédemment permet de calculer la puissance de l'onde doublée dans le cristal en fonction de la puissance à l'entrée du cristal. L'inconvénient ici, c'est qu'on ne peut pas mesurer directement la puissance à l'entrée du cristal. On va donc calculer la puissance de l'onde doublée ($\mathcal{P}_{313}$) en fonction de la puissance à l'entrée de la cavité ($\mathcal{P}_1$). Notons R_1 et T_1 les coefficients de réflexions et de transmissions en puissance du miroir d'entrée M_1 de la cavité ($R_1 = r_1^2$, $T_1 = t_1^2$ et $R_1 + T_1 = 1$) et P le coefficient représentant toutes les pertes dans la cavité $P = 1 - t'^2$. En se plaçant à résonance et en considérant que P et T sont faibles, on peut réécrire les équations 5.48 et 5.49 sous la forme suivante :

$$\mathcal{S} = \frac{4T_1}{(T_1 + P)^2} \tag{5.52}$$

et

$$\eta = \frac{(T_1 - P)^2}{(T_1 + P)^2} \tag{5.53}$$

Ces formules permettent de mettre en évidence une nouvelle notion dans une cavité de surtension, celle de l'adaptation d'impédance. En effet, on voit que si $T_1 = P$, alors toute la puissance entre dans la cavité ($\eta = 0$) et la surtension est maximale

($\mathcal{S} = \mathcal{S}_{max} = 1/T_1$). En pratique, les pertes dans la cavité sont fixes (on les minimise en se mettant à l'angle de Brewster, en travaillant dans un environnement propre et en achetant des miroirs de bonne qualité), ainsi, afin de maximiser la puissance dans la cavité, il faut choisir un miroir coupleur dont la valeur de la transmission T_1 est la plus proche possible de P. Afin de déterminer P on mesure la finesse de la cavité $\mathcal{F} = ISL/\Delta\nu$, où $\Delta\nu$ est la largeur d'un pic de transmission de la cavité, pour un miroir coupleur donné. La formule donnant la finesse de la cavité a été déterminée précédemment et peut être réécrite en fonction de T_1 et P sous la forme suivante :

$$\mathcal{F} = \frac{\pi \sqrt[4]{(1-T_1)(1-P)}}{1-\sqrt{(1-T_1)(1-P)}}. \tag{5.54}$$

A partir de l'équation 5.54 et connaissant T_1, la mesure de la finesse donne accès aux pertes P.

Revenons au calcul de l'efficacité, on peut écrire la puissance de l'harmonique 2 en fonction de la puissance en entrée de la cavité sous la forme :

$$\mathcal{P}_{313} = \alpha \mathcal{P}_1^2 = \alpha \left(\mathcal{S}\mathcal{P}_{in}\right)^2 = \alpha \frac{16T_1^2}{(T_1+P)^4} \mathcal{P}_{in}^2 \tag{5.55}$$

Connaissant P et T_1 on obtient donc une expression analytique que l'on va pouvoir comparer avec les résultats expérimentaux pour ajuster α. Notons que ce modèle ne prend pas en compte les pertes dues à la génération du second harmonique. En effet, pour une faible puissance incidente, pour laquelle les pertes intra-cavité dues au doublage sont faibles, la puissance qui circule dans la cavité augmente linéairement avec la puissance incidente, ainsi la puissance du faisceau doublé augmente quadratiquement avec la puissance incidente (voir équation 5.55). Cependant, pour une puissance incidente plus élevée, les pertes dues au doublage deviennent significatives, la puissance intra-cavité est fortement atténuée par le processus de conversion et la puissance du second harmonique augmente presque linéairement avec la puissance incidente. Ce régime se nomme régime de déplétion de la pompe et se traduit par un terme supplémentaire de perte lié au doublage : $P_{doublage} = \alpha \mathcal{P}_1$ proportionnel à la puissance intra-cavité. Nous justifierons a posteriori notre choix d'ignorer les pertes de doublage dans la suite.

5.3.3 Résultats

Avant de mesurer le taux de conversion de notre cavité, il faut d'abord injecter le bon mode dans celle-ci et adapter l'impédance. Dans la partie précédente nous avons vu que la cavité possède un waist rond entre les deux miroirs plans M_1 et M_2 de valeur $w_1 = 102\,\mu$m. Le faisceau à 626 nm provient d'une fibre optique connectée à un collimateur Schäfter Kirchhoff (référence 60FC-4-M5-33) qui donne un faisceau de waist $w_0 = 400\,\mu$m. A l'aide du formalisme des matrices ABCD nous avons déterminé un jeu de lentilles sphériques ($f_1 = 35$ mm et $f_2 = 50$ mm) permettant de créer le waist w_1 à la bonne position.

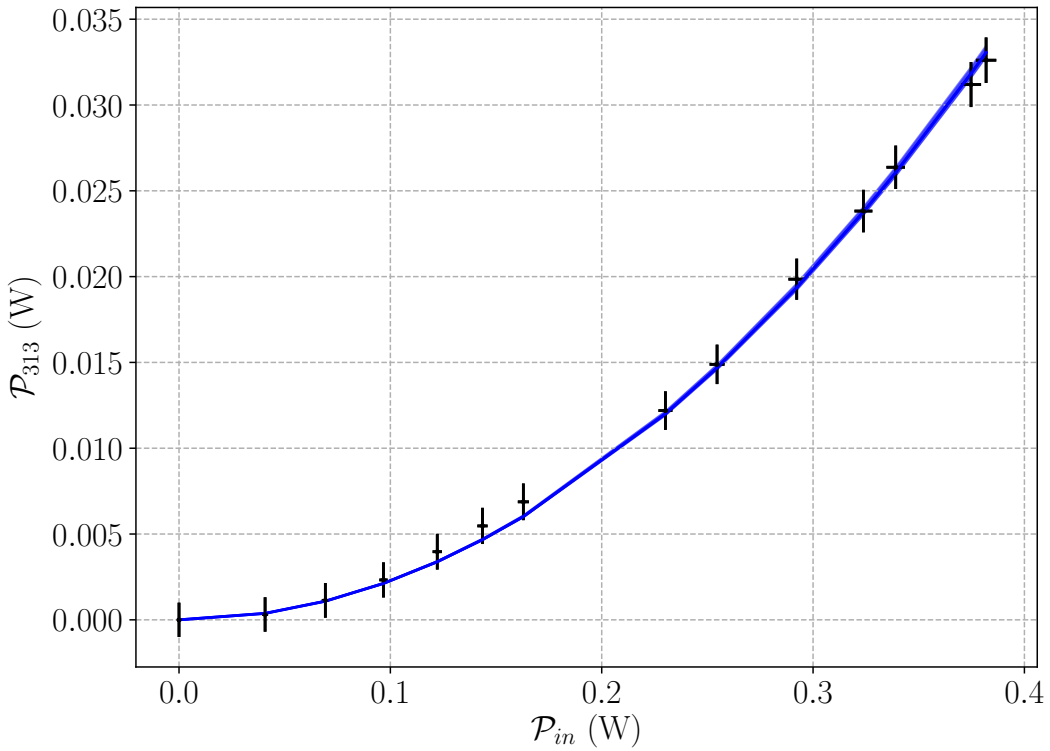

Fig 5.21: *Puissance totale de l'onde à 313 nm en fonction de la puissance en entrée de la cavité. La ligne bleue est un ajustement des données selon l'équation 5.55. On obtient un taux de conversion de* $\alpha = (7{,}04 \pm 0{,}06).10^{-5}\,\mathrm{W}^{-1}$, *ce résultat en très bon accord avec la valeur théorique* $\alpha_{th} = 7{,}25.10^{-5}\,\mathrm{W}^{-1}$

Pour l'adaptation d'impédance nous avons 3 miroirs coupleurs à notre disposition de coefficients de réflexion respectifs 99,3 %, 98,8 % et 98,2 %. C'est avec le miroir $R_1 = 98{,}2\%$ (on a donc $T_1 = 1{,}8\%$) que nous avons obtenu le plus grand taux d'injection ($1 - \eta \sim 98\,\%$). Nous avons mesuré une finesse de 175 et déterminé ainsi les pertes dans la cavité $P = 1{,}8\,\%$. La puissance à 313 nm est mesurée en sortie de la cavité, après une lame possédant le même traitement que le miroir de sortie de cavité M_4 (c.-à-d. $T_4^{313} = 99{,}84\,\%$). Afin de mesurer la vraie puissance UV dans le cristal, il faut aussi prendre en compte les pertes en sortie du cristal. Pour cela, nous utilisons les coefficients de Fresnel afin de déterminer le coefficient de transmission en sortie du cristal pour l'onde à 313 nm polarisée verticalement. On trouve un coefficient de transmission de 80 %. On a donc une relation entre la puissance UV mesurée et la puissance UV réelle dans le cristal qui est :

$$\mathcal{P}_{313} = \frac{\mathcal{P}_{313}^{mes}}{0{,}9984^2 \cdot 0{,}8}. \tag{5.56}$$

La figure 5.21 montre la puissance à 313 nm en fonction de la puissance en entrée de la cavité. En ajustant la courbe grâce à l'équation 5.55 avec comme paramètre d'ajustement α, on obtient $\alpha = (7{,}04 \pm 0{,}06).10^{-5}\,\mathrm{W}^{-1}$. Cette valeur du taux de

Cristal de BBO	
Angle d'accord de phase	$\theta_{ap} = 38{,}76\,°$
Angle de Brewster	$\theta_B = 59\,°$
Susceptibilité effective	$d_{eff} = 1{,}95\,\mathrm{pm/V}$
Angle de double réfraction	$\rho = 79{,}48\,\mathrm{mrad}$
Paramètre de Boyd et Kleinman	$h_m(B) = 0{,}04$
Waist optimal	$w_{opt} = 20{,}5\,\mu\mathrm{m}$
Taux de conversion théorique	$\alpha_{th} = 7{,}25.10^{-5}\,\mathrm{W}^{-1}$
Taux de conversion mesuré	$\alpha_{exp} = (7{,}04 \pm 0{,}06).10^{-5}\,\mathrm{W}^{-1}$
Cavité de surtension	
Longueur de la cavité	$L = 18\,\mathrm{cm}$
Distance entre les miroirs sphériques	$l = 4{,}15\,\mathrm{cm}$
Waist en Π_2	$w_2^{sag} = 21{,}7\,\mu\mathrm{m}$ et $w_2^{tan} = 31{,}7\,\mu\mathrm{m}$
Waist en Π_1	$w_1^{sag} = w_1^{tan} = 102\,\mu\mathrm{m}$
Finesse	$\mathcal{F} = 175$
Taux d'injection	$1 - \eta \sim 98\,\%$
Surtension	$\mathcal{S} \sim 57$
Pertes	$p = 1{,}8\,\%$

Tableau 5.3: *Récapitulatif des propriétés de la cavité de doublage.*

conversion est en très bon accord avec la valeur théorique calculée précédemment (voir tableau 5.1) ce qui montre que la cavité est réglée à son optimum. La dépendance quadratique de la puissance du second harmonique en fonction de la puissance en entrée de la cavité justifie notre choix de ne pas prendre en compte les pertes liées au doublage (dans notre cas on ne dépasse pas $\mathcal{P}_{in} = 400\,\mathrm{mW}$, ce qui correspond à des pertes de $P_{doublage} \simeq 0{,}15\,\%$ qui restent encore faibles en comparaison de $P = 1{,}8\,\%$). Si on compare nos résultats aux résultats obtenus dans les articles [83] et [90] il ressort que notre cavité possède plus de pertes que les leurs. Cela a pour conséquence qu'ils obtiennent plus de puissance à 313 nm pour les mêmes puissances en entrée de la cavité. Les pertes dans la cavité étant principalement liées au cristal, on suppose qu'ils possèdent des cristaux de meilleure qualité. Puisque cet effet n'était pas d'un intérêt primordial pour notre expérience et comme nous avions assez de puissance pour le refroidissement Doppler des ions Be^+, nous ne l'avons pas étudié plus en profondeur.

Finalement, on a obtenu jusqu'à 26 mW à 313 nm en sortie de la cavité pour 380 mW de 626 nm à l'entrée de la cavité. Le tableau 5.3 récapitule les propriétés du cristal et de la cavité de surtension. On a donc une source laser largement assez puissante pour le refroidissement Doppler du Be^+.

Chapitre 6

Cristaux de Coulomb

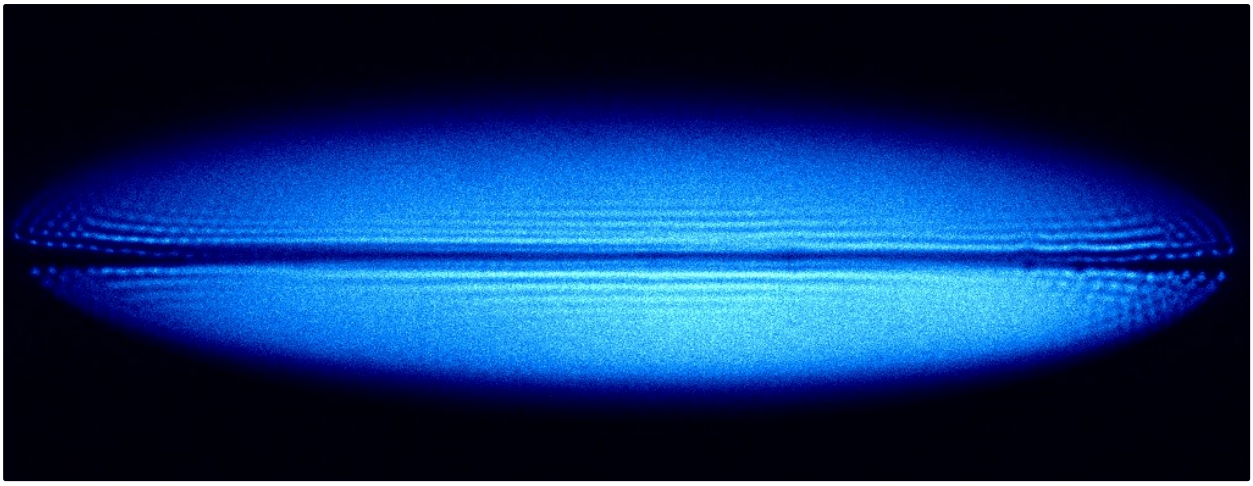

Fig 6.1: *Image en fausses couleurs d'un cristal de Coulomb aplati. Le cristal est composé d'environ* 2500 ± 500 *ions* Be^+ *et* 80 ± 20 *ions* H_2^+/H_3^+*. Le cristal mesure* $\sim 2\,\mathrm{mm}$ *de long et* $\sim 700\,\mu\mathrm{m}$ *de large. L'ensemble des étapes qui ont permis d'obtenir ce cristal sont présentées dans ce chapitre.*

Ce chapitre a pour objectif de montrer que l'ensemble des éléments décrits précédemment fonctionne comme prévu dans le but de créer, de piéger et de refroidir des ions Be^+ et des ions H_2^+ sélectionnés en état interne. On y présente en particulier les méthodes expérimentales mises au point afin d'observer les premiers cristaux d'ions. La première partie introduit la notion de cristal de Coulomb et dans quelles conditions ces cristaux sont observables, puis rappelle la nécessité du refroidissement sympathique pour refroidir les ions H_2^+, et donne un bref aperçu de ce qui se fait actuellement dans le domaine du refroidissement sympathique. La deuxième partie présente les méthodes qui permettent de détecter les ions dans le piège et on y discute les manières de différencier les espèces dans le piège. La partie 3 résume l'ensemble des paramètres qui nous ont permis d'observer les premiers ions dans le piège et discute des méthodes qui nous ont permis de cristalliser ces ions et d'observer les premiers cristaux. La partie 4 présente les méthodes qui permettent de nettoyer le piège des espèces indésirables, ce qui permet entre autre de rendre la création de cristal d'ions plus reproductible. La partie 5 discute comment contrôler

l'excès de micro-mouvement pour éviter ses effets néfastes sur notre expérience de spectroscopie. Finalement, la partie 6 décrit le comptage d'ions. On commence par présenter une méthode qui permet de compter les ions Be^+ puis une méthode permettant de déterminer le nombre d'ions H_2^+, ce qui est nécessaire pour la méthode de spectroscopie REMPD.

6.1 Ions refroidis

6.1.1 Cristaux de Coulomb

La distribution des ions dans le piège est imposée par l'équilibre entre la force de piégeage et la force de répulsion électrostatique. Pour une température proche de la température Doppler T_D, la théorie des plasmas non neutres [102] prévoit une transition de phase du nuage d'ions d'un état gazeux désordonné à un état ordonné cristallin appelé cristal de Coulomb. Cette transition se produit lorsque l'énergie potentielle inter-ions devient plus grande que leur énergie cinétique. Les cristaux de Coulomb ont été prédits théoriquement [103, 104] puis observés une première fois expérimentalement dans un piège hyperbolique [105, 106] puis dans un piège linéaire [107, 108] et par de très nombreux groupes depuis.

Lorsque l'on applique le refroidissement Doppler les ions perdent de l'énergie cinétique jusqu'à un certain point où l'on observe la transition de phase. La condition de cristallisation peut être exprimée à l'aide du paramètre Γ défini comme le rapport de l'énergie potentielle inter-ions sur l'énergie cinétique, qui s'écrit :

$$\Gamma = \frac{q^2}{4\pi\epsilon_0 a_{ws} k_B T} \tag{6.1}$$

où a_{ws} est le rayon de Wigner-Seitz (distance inter-ions), T est la température du nuage/cristal d'ions et q la charge la charge des ions. Il a été démontré [109] que la transition de phase a lieu lorsque Γ devient supérieur à 170. Pour $a_{ws} \simeq 10\,\mu$m cela correspond à une température inférieure à 10 mK, ce qui est faisable pour le Be^+.

La forme d'un cristal de Coulomb dépend du potentiel de piégeage et du nombre d'ions. En 1992, le groupe de H. Walter [110, 111] a étudié l'effet du nombre d'ions sur la structure des cristaux. En augmentant progressivement le nombre d'ions Mg^+ piégés dans un piège quadrupolaire en anneau et refroidis par laser ils ont observé des modifications de la structure ordonnée du cristal. Dans l'ordre croissant du nombre d'ions, ils ont observé une chaîne d'ions, puis une structure en zig-zag, puis une structure hélicoïdale et finalement une structure formée de plusieurs coquilles concentriques. En fonction de la forme du potentiel de piégeage, des cristaux purement bidimensionnels ont également été observés. Dans un piège de Paul linéaire, un cristal 2D de 19 ions Ca^+ a été observé un 2000 [112], tandis que dans un piège surfacique, plus de 150 ions Sr^+ dans un cristal purement bidimensionnel ont été observés [113].

6.1.2 Refroidissement sympathique

Il n'est pas toujours possible de refroidir directement des ions ou des atomes par refroidissement laser Doppler. Pour des particules dont la structure énergétique est complexe (c'est par exemple le cas des ions moléculaires) il est souvent impossible de trouver une transition fermée qui permet de faire du refroidissement Doppler ou bien il faut utiliser une quantité importante de lasers pour repomper les populations ce qui rend l'expérience très complexe. De plus, les molécules diatomiques homonucléaires (dans leur état fondamental) ne possèdent pas de moment dipolaire électrique permanent, de sorte que les règles de sélection interdisent les transitions à un photon (c'est le cas de l'ion moléculaire H_2^+ dans notre expérience). Un autre problème peut être la grande difficulté voire l'impossibilité d'obtenir une source laser à la longueur d'onde requise de refroidissement, c'est le cas de l'ion Al^+ utilisés dans les horloges à ions [114] dont la transition atomique la plus accessible pour le refroidissement laser est à 167 nm. Et finalement, la particule peut ne posséder qu'un seul état électronique lié (c'est par exemple le cas de l'ion $\overline{H}^+$ dans le projet GBAR ou de la plupart des ions négatifs) rendant le refroidissement laser impossible.

Une solution pour remédier à cela est le refroidissement sympathique qui consiste à refroidir une particule à l'aide d'une autre particule refroidie. Dans le cas des ions piégés, le refroidissement sympathique consiste à piéger deux (ou plus) espèces dans le même piège. Une première espèce est refroidie par laser et grâce à l'interaction de Coulomb entre ces espèces, le refroidissement de la première espèce entraîne le refroidissement de la deuxième.

Le refroidissement sympathique d'ions piégés a été proposé pour la première fois par D. Wineland et al. [75] en 1978 et a été démontré pour la première fois dans un piège de Penning en 1980 [115] où le refroidissement laser d'ions $^{24}Mg^+$ a permis le refroidissement sympathique de ses isotopes $^{25}Mg^+$ et $^{26}Mg^+$. En 1986, Larson et al. démontrent le refroidissement sympathique d'ions $^{198}Hg^+$ par refroidissement laser Doppler d'ions $^{9}Be^+$ dans un piège de Penning, montrant ainsi qu'il est possible de refroidir des espèces dont le rapport de masse est plus grand que 1 ($m_R/m_r = 22/1$ dans ce cas). En 1992 on a observé pour la première fois le refroidissement sympathique d'ions dans un piège radio-fréquence [111]. Puis en 1996 on observe pour la première fois le refroidissement sympathique d'ions moléculaires [116]. En 1999 Drewsen et al. démontrent le refroidissement sympathique de 15 ions grâce au refroidissement laser d'un seul ion Mg^+ [28]. Des simulations de dynamique moléculaire ont permis de comprendre pour quels rapports de masse, entre la particule à refroidir et la particule refroidie, le refroidissement sympathique est possible [117, 118]. Ces simulations ont montré par exemple qu'il est possible d'obtenir la cristallisation d'ions moléculaires de masse $m = 2 - 2000$ amu et de charge $q = 1$ refroidis sympathiquement par l'intermédiaire de deux espèces, $^{9}Be^+$ et $^{137}Ba^+$, refroidies par laser. Cette information est très importante pour nous car on travaille avec deux espèces dont le rapport de masse est 9/2.

6.2 Détection des ions

La détection des ions dans le piège est une étape obligatoire dans une expérience d'ions piégés. Une caméra EMCCD (Electron Multiplying Charge-Coupled Device) nous permet de détecter la fluorescence à 313 nm des ions Be^+ dans le piège lors des cycles absorption-émission du refroidissement laser et ainsi de s'assurer que la création et le piégeage d'ions fonctionnent. Si les ions forment un cristal de Coulomb (voir section 6.1.1) l'imagerie nous permet aussi d'identifier la présence d'autres espèces dans le piège, de compter les ions Be^+ ou encore de compenser l'excès de micromouvement. La fluorescence est aussi détectée à l'aide d'un photomultiplicateur (PM).

6.2.1 L'imagerie

La figure 6.2 montre un schéma des deux systèmes d'imagerie utilisés, l'un d'axe vertical au dessus du piège, l'autre d'axe latéral au piège. Sur le dessus de l'enceinte on a une caméra EMCCD de la marque Andor (modèle Ixon 888) possédant 1024×1024 pixels de taille $13\,\mu$m $\times$ $13\,\mu$m. Dans le plan horizontal on utilise une autre caméra EMCCD de la marque Andor (modèle Ixon Ultra) possédant 512×512 pixels de taille $16\,\mu$m $\times$ $16\,\mu$m. Les deux caméras possèdent un module Peltier intégré afin de refroidir le capteur et ainsi de diminuer le courant d'obscurité. L'efficacité quantique des capteurs CCD à 313 nm étant très faible, les capteurs sont recouverts d'un traitement qui absorbe les photons UV et émet dans le visible, permettant ainsi d'augmenter l'efficacité quantique à 313 nm à $\sim 25\%$. Les deux caméras sont aussi équipées d'un filtre passe bande entre 275 et 375 nm de la marque Thorlabs (modèle FGUV11) dont la transmission est de 80% à 313 nm permettant de diminuer la lumière parasite et de travailler à la lumière du jour. L'image des ions sur la caméra Ixon 888 est faite à l'aide d'un objectif de la marque Sill, de focale 70 mm et d'ouverture 1,6, traité anti-reflet à 313 nm et placé dans une fenêtre ré-entrante, se trouvant au dessus du piège, le plus proche possible des ions. Dans le plan horizontal l'image est réalisée à l'aide d'une première lentille asphérique de la marque Edmund (modèle 49-695) de focale $f_1 = 22$ mm à 313 nm placée sous vide à une distance f_1 du centre du piège. L'image par cette lentille des ions est ensuite faite à l'aide d'une deuxième lentille de la marque Thorlabs de focale $f_2 = 100$ mm à 313 nm placée en dehors du vide et à une distance f_2 de la caméra.

La figure 6.3 montre des images de cristaux de Coulomb obtenues (voir section 6.3) avec la caméra verticale Ixon 888. En bleu on peut observer la fluorescence à 313 nm des ions Be^+. Les défauts dans chaque cristal (la ligne sombre au centre du cristal sur l'image du haut et la ligne sombre à l'extérieur du cristal sur l'image du bas) indiquent la présence d'autres espèces dans le cristal refroidies sympathiquement. On rappelle que dans un piège radio-fréquence, les fréquences de confinement dépendent du rapport q/m de la particule telles que : $\omega_u \propto (q/m)$. Ainsi, pour des espèces de même charge, les particules les plus légères vont se localiser au centre du cristal. Cette propriété du piège nous permet, à l'aide des images, de "catégoriser" les espèces présentes dans le cristal. On sait que sur l'image du haut, le cristal est

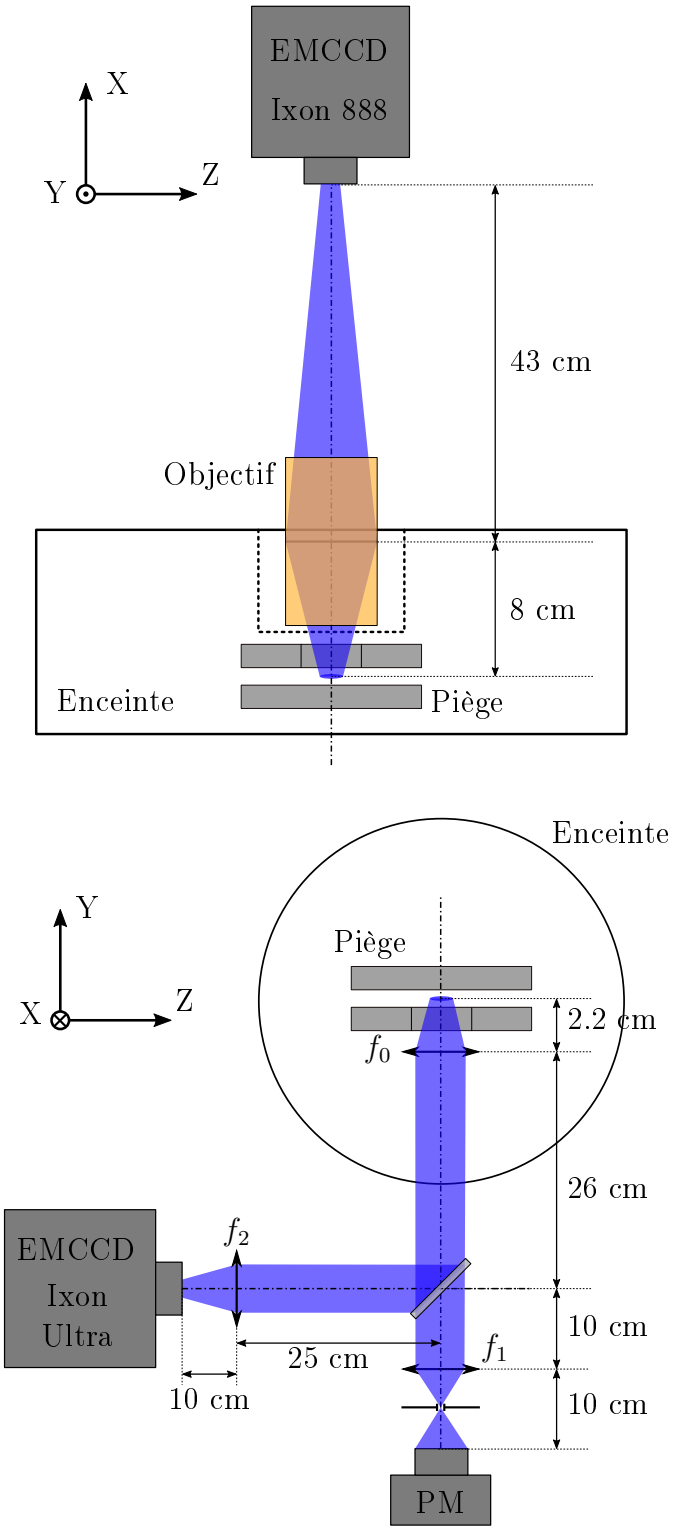

Fig 6.2: *Système d'imagerie.*

composé d'ions Be^+ ainsi que d'espèces plus légers, et sur l'image du bas, le cristal est composé d'ions Be^+ ainsi que d'espèces plus lourdes. On ne peut pour l'instant pas donner plus d'informations sur ces espèces.

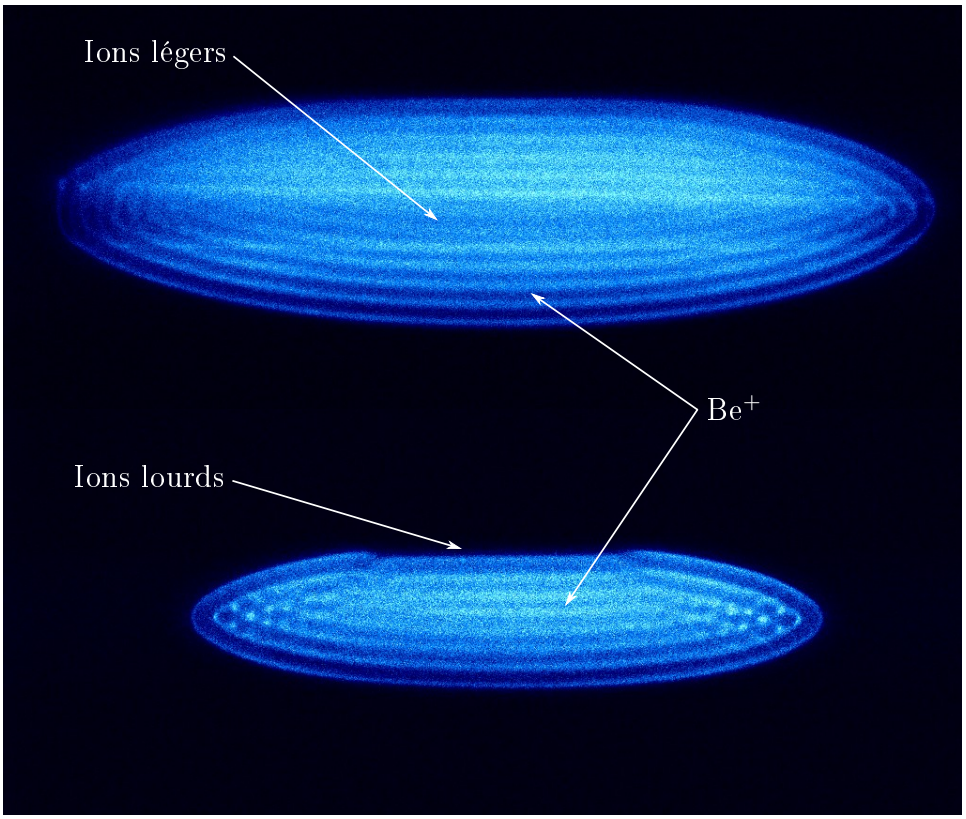

Fig 6.3: *Images en fausses couleurs de cristaux de Coulomb obtenues à l'aide de la caméra Ixon 888. Le temps d'exposition pour les deux images est de 1 s. Seuls les ions* Be^+ *fluorescent. Les espèces plus légères (lourdes) que le* Be^+ *sont refroidies sympathiquement et se localisent au centre (à l'extérieur) du cristal car le confinement est d'autant plus important (faible) que la particule est légère (lourde).*

L'imagerie permet donc d'observer en direct la création et le piégeage d'ions ainsi que les cristaux de Coulomb. Elle permet d'identifier la présence d'espèces plus lourdes ou plus légères que le Be^+ en observant les déformations du nuage d'ions. Cependant elle ne permet pas déterminer quelles sont ces espèces et pour ceci il existe d'autres techniques comme l'excitation séculaire dont on parlera par la suite.

Mesure du grandissement

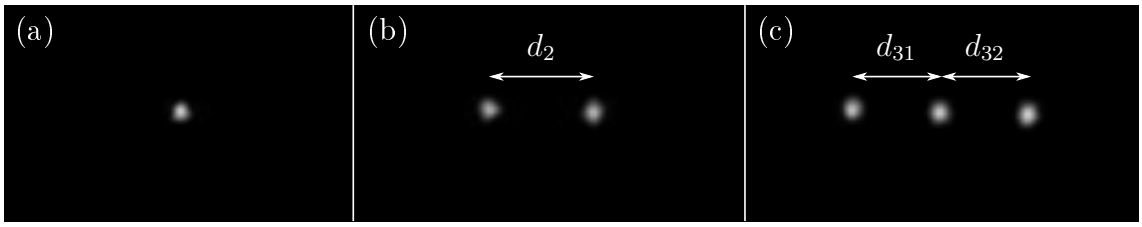

Fig 6.4: *Images de chaînes d'ions composées d'ions* Be^+*. Les images ont été prises avec la caméra verticale et pour un temps d'exposition de 1s.*

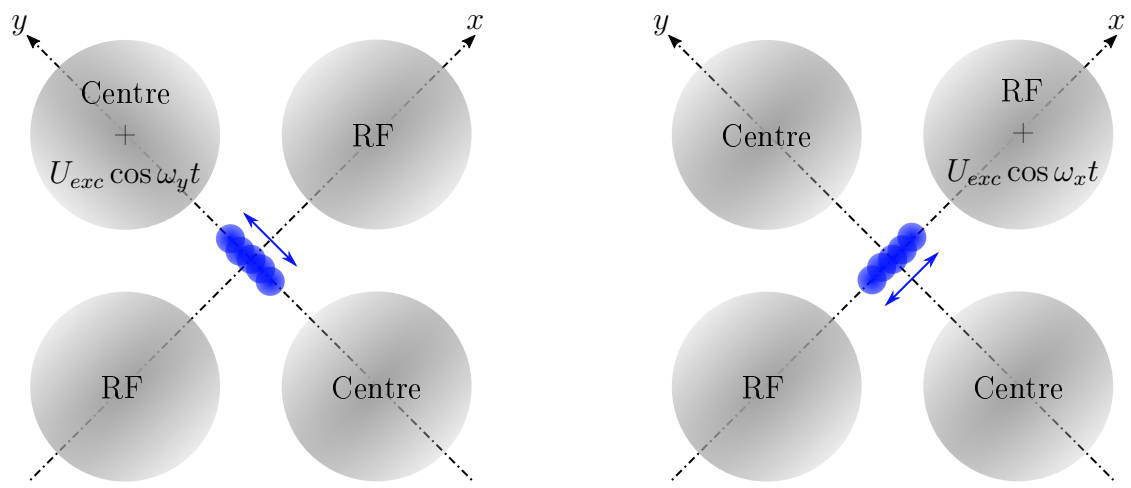

Fig 6.5: *Schéma simplifié du piège. La tension alternative d'excitation séculaire est ajoutée soit sur une des électrodes centre (à gauche) et on excite alors les ions selon l'axe y du piège, soit sur une des électrodes RF (à droite) et on excite alors les ions selon l'axe x du piège. Les électrodes endcaps ne sont pas représentées.*

La qualité du système d'imagerie permet de résoudre les ions individuellement. La figure 6.4 montre des cristaux de Coulomb composés de 1, 2 et 3 ions Be^+ obtenus avec la caméra verticale. On trouve dans l'article [119] une formule donnant les distances inter-ions pour des chaînes composées de 2 à 10 ions. Pour 2 ions (3 ions) la distance inter-ions vaut $d_2^{th} = 1{,}25992\,l$ ($d_{31}^{th} = d_{32}^{th} = 1{,}0772\,l$) où l est une distance caractéristique qui s'écrit

$$l^3 = \frac{Z^2 e^2}{4\pi\epsilon_0 M \nu_z^2} \tag{6.2}$$

où Z est la charge des ions, M est la masse des ions et ν_z est la fréquence séculaire du piège le long de l'axe de la chaîne d'ions. Pour les images de la figure 6.4 on a : $Z = 1$, $M = 9\,\text{amu}$ et $\nu_z = 128\,\text{kHz}$ et on trouve théoriquement $l = 28{,}8\,\mu\text{m}$.

A l'aide des images (b) et (c) de la figure 6.4 on détermine 3 distances inter-ions sachant que 1 pixel représente $13\,\mu$m. On a trouvé $d_2 = 351\,\mu$m, $d_{31} = 300\,\mu$m et $d_{32} = 296\,\mu$m. Le grandissement est défini tel que : $d^{cam} = Gd^{th}$, on trouve ainsi $G_2 = 9{,}8$, $G_{31} = 9{,}7$ et $G_{32} = 9{,}6$. On retient comme valeur du grandissement sur la caméra verticale la moyenne de ces résultats qui vaut :

$$G = 9{,}7 \pm 0{,}1. \tag{6.3}$$

6.2.2 L'excitation séculaire

Nous avons vu dans le chapitre 2.1.4 que l'approximation adiabatique permet de modéliser le potentiel de piégeage comme un potentiel harmonique dans les trois directions de l'espace avec les fréquences séculaires ω_x, ω_y et ω_z définies par les équations 2.20, 2.21 et 2.22 respectivement. Ces fréquences dépendent du rapport q/m de l'ion. Sur la figure 6.5 on a représenté schématiquement le principe de l'excitation séculaire. En appliquant une tension alternative sur une électrode centre

(ou une électrode RF) du piège il est possible d'exciter les ions de masse m à leur fréquence séculaire $\omega_y(m)$ (ou $\omega_x(m)$). On peut soit exciter directement les ions Be^+ soit exciter une autre espèce qui, par interaction coulombienne, va exciter les ions Be^+. Dans les deux cas, l'excitation de ces ions va entraîner un changement de la fluorescence du nuage d'ions enregistrée par le PM. En balayant la fréquence de l'excitation et en enregistrant la fluorescence en fonction de cette fréquence on peut observer des pics de fluorescence aux fréquences $\omega_u(m)$ qui révèlent la présence d'ions de masse m.

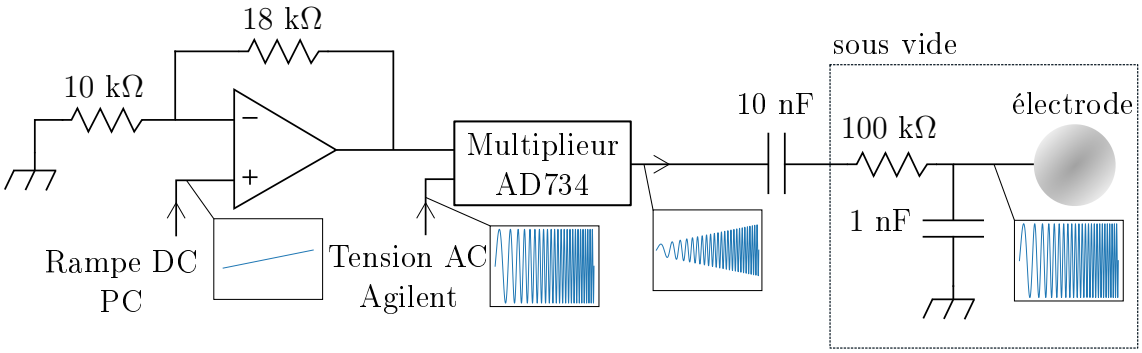

Fig 6.6: *Schéma électrique du montage permettant de réaliser l'excitation séculaire. On représente en bleu les signaux en fonction du temps pendant un balayage de la fréquence d'excitation.*

Afin d'appliquer la tension alternative pour l'excitation on utilise un générateur de signal de la marque Agilent (modèle 32120A) en mode balayage de fréquence. Les électrodes DC du piège étant filtrées à l'aide d'un circuit passe-bas RC de fréquence de coupure $f_c = 1{,}6\,\mathrm{kHz}$ (voir section 2.1.5) nous avons mis en place un montage permettant d'appliquer une tension AC sur les électrodes d'amplitude constante pendant le balayage. Ce montage est montré sur la figure 6.6. Le principe est de multiplier la sortie du générateur de fréquence (d'amplitude constante) par une rampe de tension synchronisée avec le balayage de la fréquence du générateur. La rampe de tension est choisie de manière à compenser le gain de la fonction de transfert du filtre RC sous vide. La fréquence est balayée entre f_{min} et f_{max} pendant une durée τ. La rampe de tension s'écrit :

$$U_{DC}(t) = V_e \left[1 + \left(\frac{f_{min} + (f_{max} - f_{min})t/\tau}{f_c} \right)^2 \right]^{1/2} \tag{6.4}$$

où V_e est la valeur souhaitée de l'amplitude de la tension alternative sur l'électrode. La rampe de tension est générée sur une sortie d'un convertisseur numérique-analogique contrôlé par le logiciel de l'expérience. La synchronisation entre les deux signaux n'étant pas critique, elle est aussi contrôlée par le logiciel. La rampe de tension est amplifiée à l'aide d'un amplificateur non-inverseur de gain $G = 2{,}8$. On multiplie ensuite cette tension DC avec la tension alternative d'excitation, d'amplitude 1 V, à l'aide d'un multiplicateur (modèle AD734). Le signal ainsi obtenu est ajouté par couplage capacitif à la tension DC de l'électrode.

Sur la figure 6.7 on trace le signal de fluorescence détecté par le PM en fonction de la fréquence du signal d'excitation que nous avons obtenu pour le piège linéaire dans

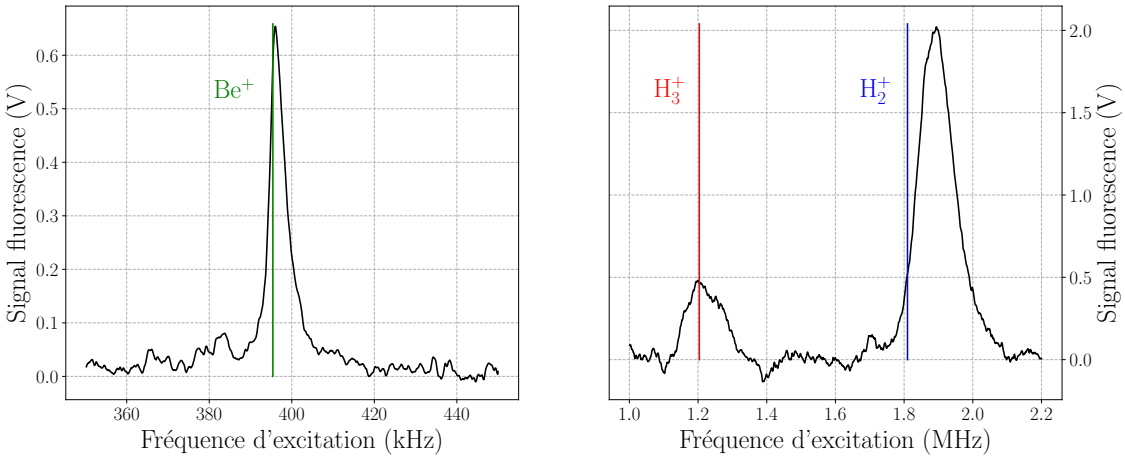

Fig 6.7: *Signaux de fluorescence du photo-multiplicateur en fonction de la fréquence du signal d'excitation. Les barreaux vert, rouge et bleu représentent les fréquences séculaires théoriques des ions* Be^+, H_3^+ *et* H_2^+ *respectivement. Sur la figure de gauche la fréquence d'excitation est balayée entre* 300 kHz *et* 500 kHz *pendant une durée* $\tau = 2\,\mathrm{s}$ *avec une amplitude* $V_e = 0{,}5\,\mathrm{mV}$. *Sur la figure de droite la fréquence d'excitation est balayée entre* 1,0 MHz *et* 2,2 MHz *pendant une durée* $\tau = 2\,\mathrm{s}$ *avec une amplitude* $V_e = 5\,\mathrm{mV}$.

la configuration suivante : $V_0 = 340\,\mathrm{V}$, $U_0 \simeq 0\,\mathrm{V}$, $U_1 \simeq 7\,\mathrm{V}$ et $\Omega/2\pi = 13{,}3\,\mathrm{MHz}$. Sur la figure de gauche on balaye la fréquence d'excitation entre 300 kHz et 500 kHz avec une amplitude $V_e = 0{,}5\,\mathrm{mV}$. On obtient des pics de fluorescence aux fréquences séculaires théoriques des ions Be^+ (vert), H_3^+ (rouge) et H_2^+ (bleu), attestant de la présence des ces espèces dans le piège.

L'excitation séculaire permet ainsi de déterminer quelles espèces sont présentes dans le piège. De plus l'idée est aussi d'utiliser le signal d'excitation pour déterminer le nombre d'ions H_2^+ dans le piège afin d'obtenir le signal de spectroscopie. Nous discuterons de l'aspect quantitatif de ce signal dans la partie 6.6.2.

6.3 Procédure de création

Une fois l'ensemble des éléments nécessaires à la création, au piégeage, au refroidissement et à l'imagerie des ions Be^+ mis en place, nous avons pu commencer à chercher un signal de fluorescence témoignant de la présence d'ions dans le piège. La procédure consiste à appliquer des tensions sur le piège en se plaçant dans la zone de stabilité du Be^+ (voir chapitre 2.1.4) puis à allumer le four à Be ainsi que le canon à électrons pendant une certaine durée. Pendant le chargement la fréquence du laser de refroidissement est à un grand désaccord afin de refroidir les ions les plus chauds (voir section 5.1.2). Une fois le chargement terminé, la fréquence du laser est rapprochée de la fréquence de la transition afin de refroidir l'ensemble des classes de vitesses. Une fois ce signal trouvé, nous avons optimisé les différents paramètres afin de rendre la création et le piégeage reproductibles. Dans le tableau 6.1 on

donne les différents paramètres utilisés lors des premières expériences de créations d'ions.

Fréquence RF	$\Omega/2\pi = 13{,}33\,\mathrm{MHz}$
Tension RF	$V_0 = 500\,\mathrm{V}$
Tension DC électrodes RF	$U_0 = 0\,\mathrm{V}$
Tension DC électrodes encap.	$U_1 = 10\,\mathrm{V}$
Courant four	3,1 A
Courant canon à électrons	1,49 A
Tension filament canon à électrons	$-145\,\mathrm{V}$
Tension Wehnelt canon à électrons	$-140\,\mathrm{V}$
Temps de création	60 s
Désaccord initial laser de refroidissement	$-145\,\mathrm{MHz}$
Désaccord final laser de refroidissement	$-15\,\mathrm{MHz}$
Puissance laser de refroidissement	5 mW

Tableau 6.1: *Premiers paramètres de création et de piégeage d'ions* Be^+.

Nous avons rapidement observé la fluorescence des ions à l'aide des caméras. Néanmoins il a fallu mettre au point une méthode peu orthodoxe afin d'observer les premiers cristaux. En effet lors des premières tentatives nous n'arrivions pas à cristalliser le nuage d'ions. Après de nombreux essais nous avons trouvé une méthode reproductible consistant à baisser la tension RF puis à modifier brusquement les tensions DC modifiant ainsi U_0. Lors de cette procédure nous pouvions voir le nuage d'ions changer brusquement de position dans l'espace puis revenir à sa position de départ. En théorie une modification de U_0, même brusque, ne devrait pas modifier la position du cristal mais changer uniquement sa forme. La raison pour laquelle le nuage bouge provient de la manière dont le changement des tensions est effectué. En effet le code Python change la valeur de la tension sur une électrode puis sur l'autre, ce qui a comme conséquence de modifier la position du minimum du potentiel électrostatique pendant un cours instant et ainsi de faire bouger le cristal. C'est pour cette raison que cette procédure a été baptisée "shaking" (secouer). Une fois la procédure terminée nous avons pu observer les premiers cristaux.

Une hypothèse permettant d'expliquer que cette méthode fonctionne est la suivante : lors de la création des ions on ne crée pas uniquement du Be^+ mais aussi d'autres espèces provenant de l'ionisation du gaz résiduel ou d'atomes neutres provenant du four. Ces autres espèces qui ne sont pas refroidies par laser chauffent le nuage d'ions et empêchent la cristallisation. Lors du shaking le potentiel de piégeage est modifié de telle sorte que les espèces de masse > 9 amu sortent de la zone de stabilité du piège. Cela a pour conséquence de les éjecter en dehors du piège et de permettre la cristallisation. L'hypothèse de la présence d'ions lourds dans le piège sera plus tard justifiée par l'observation de cristaux de Coulomb déformés par leur présence ainsi que par la mise en place d'une procédure de nettoyage plus reproductible dont nous allons discuter dans la partie suivante.

En appliquant une procédure de chargement similaire mais avec une tension RF plus basse, de l'ordre de 200 V, nous avons aussi observé la présence d'ions H_2^+ juste

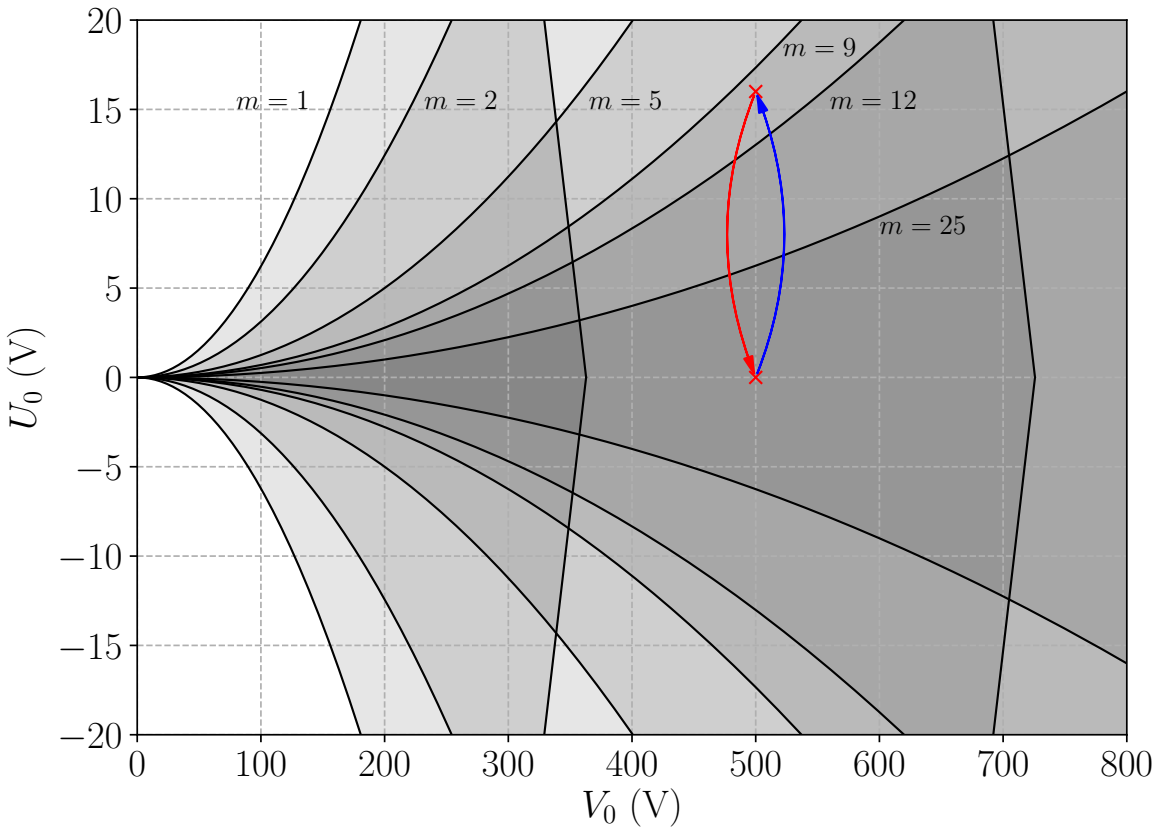

Fig 6.8: *Zones de stabilité du piège linéaire pour les espèces de masses* $m = 1,2,5,9,12$ amu *et de charge identique* $q = 1$ *en fonction des tensions* U_0 *et* V_0. *Les flèches représentent la procédure de nettoyage présentée dans la partie 6.4.*

après le chargement, puis après quelques secondes la présence d'ions H_3^+. Les ions H_2^+ proviennent de l'ionisation par impact électronique du gaz résiduel d'H_2 dans l'enceinte. Les ions H_3^+ proviennent de la réaction chimique $H_2^+ + H_2 \rightarrow H_3^+ + H$ [120], c'est pourquoi ils n'apparaissent que plus tard dans le piège. La réaction étant assez lente (~ 5 min pour transformer tous les ions H_2^+ en ions H_3^+) elle ne sera pas un facteur limitant pour la spectroscopie. Nous avons vu dans le chapitre 3 que les ions H_2^+ ainsi créés ne sont pas de bons candidats pour la spectroscopie et les ions H_3^+ ne sont pas utiles pour notre expérience. De plus lors de la séquence de spectroscopie finale nous voudrions pouvoir nous débarrasser des ions H_2^+ restant après la REMPD tout en gardant les ions Be^+ puis refaire des ions H_2^+ par REMPI et reprendre un point du signal de spectroscopie. Ceci permettra de ne pas recharger le piège avec des ions Be^+ trop souvent, limitant ainsi l'utilisation du four à Be et du canon à électrons ou du laser à 213 nm. Nous allons donc aussi voir dans la partie suivante une méthode de nettoyage des ions H_2^+ et H_3^+.

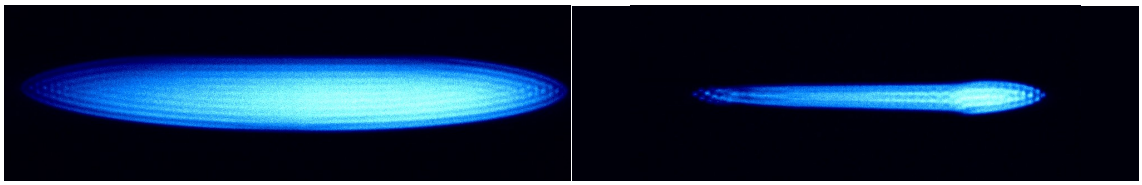

Fig 6.9: *Images en fausses couleurs de cristaux de Coulomb de Be^+ obtenues avec la caméra Ixon 888. A gauche : cristal composé uniquement d'ions Be^+. A droite : cristal composé d'ions Be^+ et d'ions plus lourds dont la présence est indiquée par la déformation verticale du cristal. Selon l'axe horizontal, la déformation provient de la force de pression de radiation qui pousse les ions Be^+ vers la droite. Le temps d'exposition pour les deux images est de 1 s.*

6.4 Nettoyage du nuage d'ions

6.4.1 Nettoyage des ions lourds

On appelle nettoyage du piège la méthode permettant d'éjecter hors du piège toutes les espèces autres que le Be^+. Dans la partie 2.1.4 on a vu que la zone de stabilité d'un piège est définie comme l'ensemble des paramètres (a_u,q_u) pour lesquels la trajectoire d'un ion dans le piège est stable. Ces paramètres dépendent du rapport q/m de l'ion ainsi que de la tension DC U_0 et de l'amplitude RF V_0 (voir équation 2.7). On trace sur la figure 6.8 les différentes zones de stabilité pour différentes masses (on considère afin de simplifier que $q = 1$). On voit sur cette figure qu'en gardant la tension RF V_0 constante et en augmentant la tension DC U_0 il est possible de rendre le piège progressivement instable pour des ions de différentes masses, en commençant par les ions les plus lourds. On augmente ainsi U_0 jusqu'à se placer à une position où seuls les ions de masse $m \leq 9$ amu sont stables, représentée par la flèche bleue sur la figure 6.8, éjectant ainsi en dehors du piège toutes les autres espèces de masse $m > 9$ amu.

Une fois le chargement terminé mais avant de se placer au désaccord final du laser de refroidissement, la procédure de création d'un nuage d'ions cristallisé consiste à se placer dans la configuration instable du piège pour les masses $m > 9$ amu (flèche bleue sur la figure 6.8) puis à revenir à la configuration initiale (flèche rouge sur la figure 6.8) et enfin modifier la fréquence du laser pour se placer à la valeur du désaccord final et observer le cristal. La figure 6.9 montre des images en fausses couleurs de cristaux de Coulomb d'ions Be^+ obtenues avec la caméra verticale. Sur l'image de gauche la procédure de nettoyage a été appliquée et obtient ainsi un cristal composé uniquement d'ions Be^+. L'image de droite a été obtenue en partant d'un cristal de Be^+ pur puis en appliquant la procédure de chargement pendant un temps court de l'ordre de ~ 5 s, créant ainsi à nouveau du Be^+ mais aussi des espèces plus lourdes qui se placent autour du cristal et le déforment. La distribution particulière du cristal le long de son axe est due à la force de pression de radiation du laser de refroidissement (voir section 5.1.2) qui se propage de la gauche vers la droite sur l'image poussant ainsi les ions Be^+ vers la droite.

6.4.2 Nettoyage des ions légers

Une méthode identique permettant de nettoyer le piège des ions de masse $m < 9\,\text{amu}$ consisterait à garder U_0 constant et à augmenter V_0. Les ions H^+ deviennent instables pour $V_0 > 360\,\text{V}$ et les ions H_2^+ pour $V_0 > 725\,\text{V}$. Expérimentalement nous sommes limités à $V_0^{max} \sim 540\,\text{V}$, on ne peut donc pas nettoyer le piège des ions H_2^+ et H_3^+ par cette méthode. La procédure de nettoyage des ions légers que nous avons mise en place consiste tout d'abord à se placer à une position non symétrique du cristal en augmentant U_0. Dans cette position le piège devient plus confinant dans la direction $\boldsymbol{x}$ et moins confinant dans la direction $\boldsymbol{y}$. Une fois dans cette position, on applique une séquence d'excitation séculaire autour des fréquences $\omega_y(m = 2)/2\pi$ et $\omega_y(m = 3)/2\pi$ afin d'exciter uniquement les ions H_2^+ et H_3^+.

Dans la pratique on se place dans la configuration suivante du piège : $V_0 = 280\,\text{V}$, $U_0 \simeq 4\,\text{V}$, $U_1 \simeq 8\,\text{V}$ et $\Omega/2\pi = 13{,}3\,\text{MHz}$. On procède ensuite à un balayage de la fréquence d'excitation séculaire entre 800 kHz et 1 MHz, puis dans un second temps à un balayage de la fréquence d'excitation séculaire entre 1 MHz et 1,5 MHz, dans les deux cas l'amplitude du signal d'excitation est de 10 mV . La figure 6.10 montre les signaux de fluorescence obtenus. A nouveau on trouve des pics de fluorescence aux fréquences séculaires théoriques $\omega_y^{th}(m = 3)/2\pi = 839\,\text{kHz}$ (en rouge sur la figure) et $\omega_y^{th}(m = 2)/2\pi = 1{,}35\,\text{MHz}$ (en bleu sur la figure). Une fois un premier balayage terminé un second balayage identique ne montre plus de pic de fluorescence, ce qui indique que nous avons en effet réussi à nettoyer le piège de l'espèce concernée. De plus une fois le nettoyage des ions H_3^+ puis des ions H_2^+ terminé l'image du cristal sur la caméra montre qu'il n'y a plus d'espèce légère dans le cristal, indiquant à nouveau que la procédure de nettoyage fonctionne.

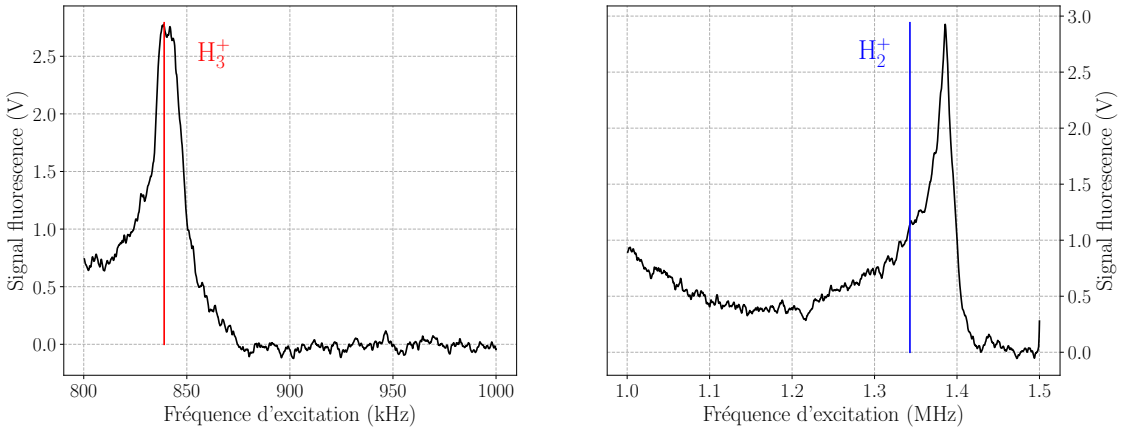

Fig 6.10: *Procédure de nettoyage des ions H_3^+ (à gauche) et H_2^+ (à droite). On trace les signaux de fluorescence en fonction de la fréquence d'excitation séculaire. Sur la figure de gauche on balaye la fréquence d'excitation entre* 800 kHz *et* 1 MHz *pendant une durée $\tau = 1\,\text{s}$ avec une amplitude $V_e = 10\,\text{mV}$. Sur la figure de droite on balaye la fréquence d'excitation entre* 1,0 MHz *et* 1,5 MHz *pendant une durée $\tau = 1\,\text{s}$ avec une amplitude $V_e = 10\,\text{mV}$.*

6.5 Compensation du micromouvement

Dans un piège de Paul linéaire idéal, le minimum du potentiel effectif de piégeage coïncide avec un nœud du champ RF (voir section 2.1.4). Ainsi un ion piégé au centre du piège ne possède pas de micro-mouvement. Dans la pratique une différence de phase entre les électrodes RF et/ou la présence de champs DC résiduels (pouvant par exemple provenir de l'accumulation de charges sur les défauts isolants des électrodes, de la réalisation imparfaite de la géométrie des électrodes ou encore d'un couplage du potentiel RF sur les électrodes DC) induisent un déplacement entre ces deux minima. Cela engendre un excès de micro-mouvement [121] car l'ion ne se trouve plus piégé sur un nœud du champ RF. Cet excès de micro-mouvement a plusieurs effets néfastes dont le chauffage RF qui rend difficile voire impossible la cristallisation et bien sûr, induit de l'effet Doppler du second ordre qui peut décaler et élargir les raies de REMPD. Il est donc important de le compenser. Pour cela on ajoute des tensions DC supplémentaires sur les électrodes afin de déplacer le minimum du potentiel effectif pour le faire coïncider avec un nœud du potentiel RF.

Reprenons les équations de mouvement d'un ion dans un piège radio-fréquence (voir éq. 2.5 et 2.6) en ajoutant un champ électrique statique uniforme $\boldsymbol{E_{dc}}$, les équations de mouvement deviennent alors :

$$\frac{\mathrm{d}^2 u}{\mathrm{d}t^2} + [a_u + 2q_u \cos(\Omega t)] \frac{\Omega^2}{4} u = \frac{q\boldsymbol{E_{dc}}.\boldsymbol{u}}{m}, \tag{6.5}$$

où $u = x$ ou y et $\boldsymbol{u} = \boldsymbol{x}$ ou $\boldsymbol{y}$. Comme il n'y a pas de champ RF le long de l'axe $\boldsymbol{z}$ du piège, on restreint l'étude au plan radial. Au premier ordre en a_u et q_u, l'équation 6.5 admet comme solution [121] :

$$u(t) \simeq [u_{dc} + u_0 \cos(\omega_{u,rf} t)] \left[1 + \frac{q_u}{2} \cos(\Omega t)\right], \tag{6.6}$$

où

$$u_{dc} \simeq \frac{4q\boldsymbol{E_{dc}}.\boldsymbol{u}}{m(a_u + \frac{1}{2}q_u^2)\Omega^2} \simeq \frac{q\boldsymbol{E_{dc}}.\boldsymbol{u}}{m\omega_{u,rf}^2}. \tag{6.7}$$

Le champs $\boldsymbol{E_{dc}}$ déplace la position moyenne des ions au point $\boldsymbol{r}_{dc} = x_{dc}\,\boldsymbol{x} + y_{dc}\,\boldsymbol{y}$ mais ne change pas directement l'amplitude u_0. Le champ électrique RF à la position $\boldsymbol{r}_{dc}$ entraîne un excès de micro-mouvement qui s'écrit :

$$\zeta_u(t) = \frac{q_u u_{dc}}{2} \cos(\Omega t) = \frac{qV_0 u_{dc}}{m\Omega^2 r_0^2} \cos(\Omega t). \tag{6.8}$$

Contrairement au mouvement séculaire, l'excès de micro-mouvement ne peut pas être réduit de manière significative par des méthodes de refroidissement car il s'agit d'un mouvement forcé dont la source est le champ RF. L'effet Doppler du second ordre correspondant à ce mouvement s'écrit :

$$\frac{\Delta\nu}{\nu} = -\frac{v^2}{2c^2} = -\left(\frac{qV_0 r_{dc}}{m\Omega r_0^2 c^2}\right)^2. \tag{6.9}$$

Il existe plusieurs méthodes permettant de détecter et de compenser l'excès de micro-mouvement [121]. Une méthode que nous avons utilisée est basée sur la corrélation de photons (*cross-correlation technique* dans [121]). Nous avons vu précédemment que le micro-mouvement est un mouvement à la pulsation Ω. Par effet Doppler ce micro-mouvement module la fréquence du laser de refroidissement vu par l'ion entraînant une modulation du signal de fluorescence des ions à la fréquence RF. Notons toutefois que les ions qui ne se trouvent pas au centre du nœud RF (même pour un piège idéal) subiront du micro-mouvement, aussi afin d'augmenter le rapport signal à bruit du signal de corrélation on travaille avec une chaîne d'ions. Les systèmes de détection de la fluorescence présentés précédemment ne permettent pas de détecter plus d'un photon pendant une période RF ($T \sim 75\,\mathrm{ns}$) rendant l'étude d'un signal de corrélation impossible. Une solution consiste à mesurer les temps d'arrivée de chaque photon vis-a-vis de la phase de la RF et de créer un histogramme de ces temps. Il est alors possible de détecter une modulation de la fluorescence résolue en temps sur une période de la RF.

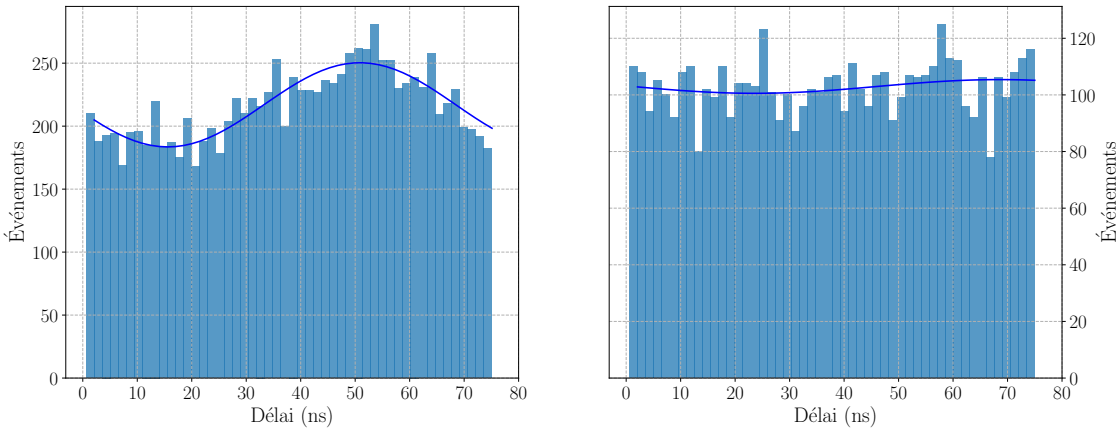

Fig 6.11: *Signaux de la modulation de la fluorescence d'une chaîne d'ions composée d'environ 10 ions* Be^+*, avant (gauche) et après (droite) avoir compensé l'excès de micro-mouvement. Les histogrammes sont ajustés par la loi* $f(t) = A\cos(\Omega t + B) + C$*. Sur la figure de gauche on obtient :* $A = 33 \pm 3$ *évén.,* $B = 0.4 \pm 0.1$ *et* $C = 216 \pm 2$ *évén. ; sur la figure de gauche on obtient :* $A = 2{,}4 \pm 2$ *éven.,* $B = -0.5 \pm 0.8$ *et* $C = 103 \pm 1$ *éven..*

Pour mesurer ces temps on utilise un TDC (Time-to-Digital converter) de la marque AMS (modèle GP22) qui permet de mesurer le temps entre deux impulsions START-STOP avec une précision de l'ordre de la ns. Un photo-multiplicateur en mode comptage de photons génère une impulsion START et un comparateur rapide génère une impulsion STOP pour chaque passage par zéro négatif de la RF. Sur la figure 6.11 on trace les histogrammes dans le cas non compensé et dans le cas compensé d'environ 10 000 événements de fluorescence enregistrés pendant environ 1 s. Les données sont ajustées par la loi $f(t) = A\cos(\Omega t + B) + C$. En appliquant des tensions DC sur les électrodes du piège on minimise le micro-mouvement en diminuant le paramètre d'ajustement A. Sur la figure de gauche on obtient $A = (33{,}4 \pm 3)$ éven.. En ajoutant environ 500 mV sur une des électrodes RF on obtient

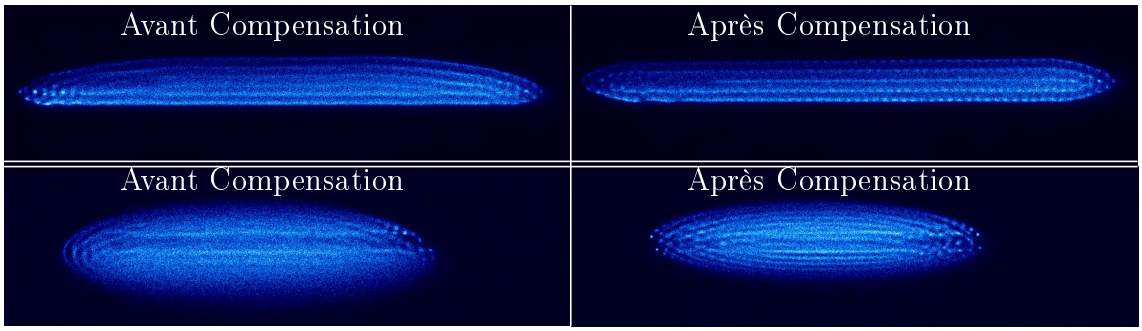

Fig 6.12: *Méthode de compensation de l'excès de micro-mouvement à l'aide des images de cristaux. Sur les images du haut, les ions lourds se placent autour des ions Be^+ et déforment le cristal. Dans le cas non compensé la déformation n'est pas symétrique. Dans le cas compensé elle l'est. Sur les images du bas, les ions légers se placent au centre du cristal. Dans le cas non compensé, les ions Be^+ se placent de manière non symétrique autour des ions légers. Dans le cas compensé le cristal est symétrique.*

les résultats de la figure de droite où $A = (2{,}4 \pm 2)$ éven., ce qui indique qu'il n'y a quasiment plus d'excès de micro-mouvement.

Cette méthode ne devrait théoriquement pas fonctionner dans notre cas car elle repose sur l'effet Doppler, or dans notre expérience l'axe de propagation du laser de refroidissement est orthogonal aux directions de micro-mouvement. Deux hypothèses permettent d'expliquer qu'on obtient tout de même des résultats. La première est que l'axe de propagation du laser n'est pas parfaitement orthogonal aux axes x et y du piège, et la composante non-orthogonale du faisceau contribue au signal de corrélation. La deuxième est que l'interaction de Coulomb entre les ions couple l'ensemble des degrés de liberté, ainsi un excès de micro-mouvement dans la direction radiale du piège entraîne un mouvement à la même fréquence dans la direction de l'axe du piège et donc dans celle du laser de refroidissement. Bien qu'elle fonctionne, cette méthode ne semble pas assez précise pour les raisons que l'on vient d'évoquer.

D'autres méthodes permettent de minimiser l'excès de micro-mouvement et utilisent les images des cristaux obtenus avec les caméras. Elles reposent sur le fait que pour un piège non compensé, la distance entre le minimum du potentiel effectif et le nœud du potentiel RF est d'autant plus grande que l'amplitude RF V_0 est faible ou que la masse de l'ion est grande. Dans le cas d'un cristal pur, une méthode consiste à appliquer une modulation lente sur l'amplitude RF [121]. On voit alors le cristal *respirer* (ce qui est normal car on modifie le confinement radial) mais aussi se déplacer (si la compensation n'est pas faite) sur l'image en se rapprochant du nœud RF lorsque l'amplitude de la tension RF augmente. On compense alors le micro-mouvement en modifiant les tensions DC sur les différentes électrodes afin que le cristal ne se déplace plus sur les deux caméras. Dans le cas d'un cristal non-pur, une méthode consiste à observer la déformation du cristal due à la présence d'ions lourds. Ces déformations se déplacent lorsqu'on change la position du cristal. Lorsque les déformations apparaissent symétriques, le cristal est positionné symétriquement autour

du nœud de la RF et l'excès de micro-mouvement est compensé. Enfin si le cristal est composé d'ions plus légers (caractérisé par une ligne sombre en son centre), une méthode consiste à déplacer à nouveau le cristal afin que les ions Be^+ se placent de manière symétrique autour des ions légers. Ces deux dernières méthodes sont présentées sur la figure 6.12. Toutes ces méthodes sont limitées en précision par la résolution du système d'imagerie. Sur nos images il est possible de déterminer la position d'un ion avec une résolution de l'ordre de 6 pixels. La distance inter-pixels étant de $13\,\mu$m (voir section 6.2.1) et le grandissement étant de 9,7 (voir section 6.2.1), cela correspond à une résolution de l'ordre de $8\,\mu$m. L'effet Doppler du second ordre pour un ion H_2^+ décalé de $8\,\mu$m par rapport à un nœud du champ RF est donné par l'équation 6.9 et vaut $\left|\frac{\Delta\nu}{\nu}\right|_{2D} = 7{,}2.10^{-14} < 10^{-12}$ pour $V_0 = 300\,\mathrm{V}$. La méthode par imagerie est donc assez précise pour notre expérience de spectroscopie.

6.6 Comptage d'ions

On a vu que la méthode de spectroscopie REMPD consiste à mesurer une fraction restante d'ions en fonction de la fréquence du laser à $9{,}17\,\mu$m. Pour cela il est nécessaire de pouvoir compter le nombre d'ions H_2^+ dans le piège. Il existe une méthode qui consiste à comparer des images réelles de cristaux avec des images obtenues par des simulations de dynamique moléculaire [122]. Une autre méthode permet de déterminer le nombre d'ions présents dans une longue chaîne 1D sans les compter, elle consiste à mesurer la distance inter-ion des ions au centre de la chaîne ainsi que le potentiel de piégeage le long de la chaîne [123]. De manière générale il est difficile de connaître précisément le nombre d'ions présents dans un piège. Cette difficulté est accrue lorsque l'on veut compter des ions qui ne fluorescent pas comme les ions refroidis sympathiquement par exemple.

Pour nous il n'est pas nécessaire de compter le nombre d'ions Be^+ pour notre expérience de spectroscopie. Néanmoins afin de tester la photo-ionisation à 213 nm (voir section 2.3.3) nous avons mis en place une méthode permettant de compter le nombre d'ions Be^+. La méthode que nous allons décrire requiert des images de cristaux de bonne qualité et permet de déterminer de manière exacte le nombre d'ions pour des cristaux de taille maximale d'environ ~ 100 ions. Elle a l'avantage d'être très précise comme nous allons le voir. Nous discuterons ensuite de la méthode qui nous permet d'estimer le nombre d'ions H_2^+ présents dans le nuage.

6.6.1 Comptage des ions Be^+

La méthode consiste à aplatir le nuage d'ions en augmentant la valeur de la tensions DC U_0. Si le nombre d'ions n'est pas trop important il est ainsi possible de rendre le cristal purement 2D. Le système d'imagerie permettant de résoudre chaque ion individuellement, on utilise la fonction *SimpleBlobDetector* de la bibliothèque cv2 de Python qui permet de réaliser de la détection de *Blob*, un *Blob* étant défini comme un groupe de pixels connectés dans une image qui partagent une propriété commune

(par exemple, une forme ou une valeur de niveaux de gris). Avant d'appliquer l'algorithme de détection l'image est retouchée. On applique d'abord un seuil qui permet de supprimer la fluorescence parasite sur l'image due au laser à 313 nm ou au courant d'obscurité de la caméra. On applique ensuite un filtre de flou Gaussien (*Gaussian blur*) qui permet de lisser l'image afin à nouveau de réduire le bruit sur l'image. La figure 6.13 montre les résultats obtenus par cette méthode, les cercles rouges représentent les *Blobs* détectés par l'algorithme. Les cristaux ont été obtenus en plaçant le piège dans la même configuration que celle qui permet de nettoyer les ions lourds 6.4.1. Les images ont été prises avec la caméra verticale. Si on regarde le dernier cristal de la figure 6.13 on s'aperçoit que les ions du bas semblent être plus gros que les ions du haut. Cette différence provient du fait que le cristal est aplati dans la direction y du piège alors que l'image est faite dans la direction X qui est à 45 % de l'axe y. On ne peut donc pas avoir une image nette de l'ensemble des ions. Néanmoins, afin que tous les ions soient les plus nets possible, on a ajouté un diaphragme au niveau de l'objectif afin d'augmenter la profondeur de champ du système. Les images ont été prises avec un temps d'exposition de 0,5 s. Cette méthode donne ainsi le nombre exact d'ions Be^+ pour des cristaux composés d'un maximum d'environ 100 ions. Pour des cristaux composés de plus de 100 ions, le micro-mouvement des ions situés sur les rangs éloignés de l'axe du cristal chauffe de manière importante ce dernier. Cela a pour conséquence de flouter l'image du cristal et de compliquer la résolution individuelle de chaque ion.

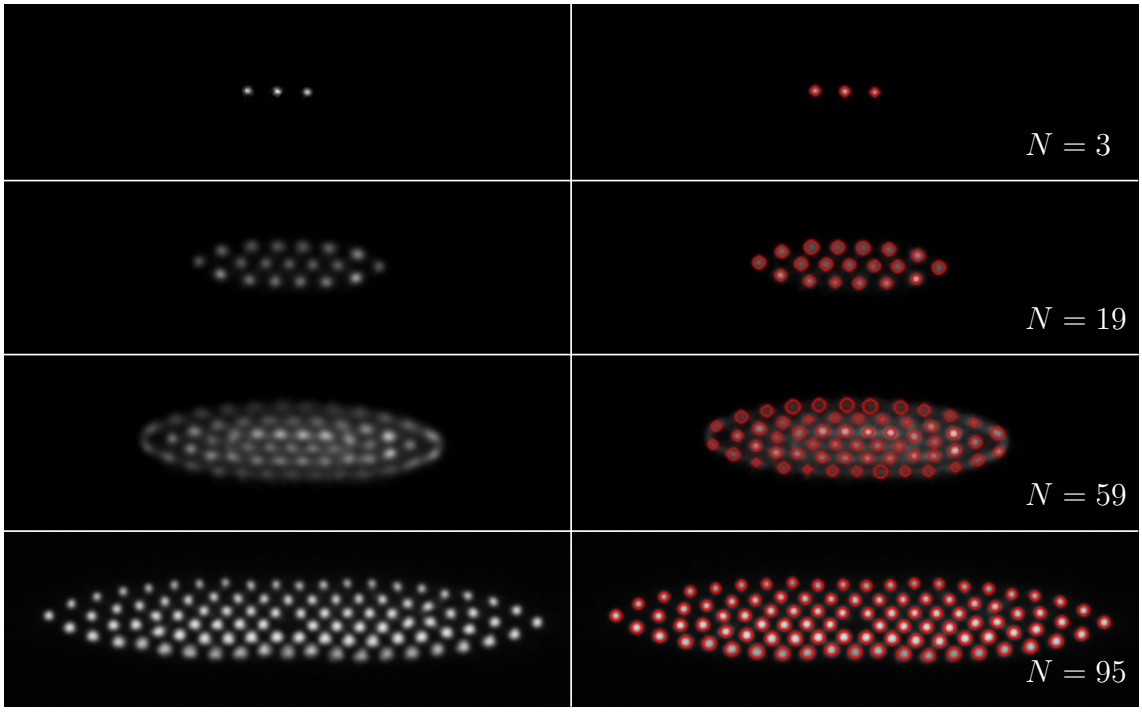

Fig 6.13: *Images de cristaux de Coulomb purement 2D. Sur les figures de droite, les cercles rouges représentent la position des ions détectés par l'algorithme décrit dans ce chapitre. Cette méthode permet de compter exactement le nombre d'ions Be^+ pour des cristaux composés d'un maximum d'environ 100 ions.*

6.6.2 Comptage des ions H_2^+

Sur la dernière image de la figure 6.13 on peut voir un ion léger au centre du cristal qui ne fluoresce pas. Cette observation laisse à penser que la méthode de détection de *Blob* pourrait aussi permettre de compter les ions légers refroidis sympathiquement. On a donc tenté d'appliquer cette méthode à ces ions mais on s'est rapidement heurté à des problèmes liés au fait qu'on ne tente plus de détecter une tache lumineuse mais une tache sombre dont les bordures ne sont pas définies. Ainsi l'algorithme a tendance à regrouper les ions voisins dans le cristal par paquets ce qui rend le résultat du nombre d'ions faux. On peut imaginer plusieurs moyens d'améliorer l'algorithme afin de contourner ce problème, par exemple en prenant en compte les distances inter-ions pendant la détection afin de différencier les taches sombres constituées de 1 ou de plusieurs ions. On pourrait aussi par exemple comparer la surface totale des taches sombres d'un cristal composé d'ions légers à celle d'un cristal pur de Be^+ composé du même nombre d'ions obtenu soit à l'aide de simulation soit expérimentalement. Cependant, dans un souci de faire avancer l'expérience nous n'avons pour l'instant pas travaillé à faire fonctionner cette méthode.

Dans les articles [124] et [13], les auteurs utilisent le pic de fluorescence de l'excitation séculaire (voir figure 6.7), en faisant l'hypothèse que la hauteur du pic est proportionnelle au nombre d'ions excités, afin de mesurer un signal de spectroscopie REMPD sur les ions HD^+. On compte donc utiliser la même méthode afin de mesurer le signal de spectroscopie REMPD dans notre expérience.

Chapitre 7

Spectroscopie à haute résolution

L'objectif de ce chapitre est de présenter l'ensemble des éléments qui permettent d'exciter la transition ro-vibrationelle $(v=0,L=2) \rightarrow (v=1,L=2)$ à 9,17 μm dans H_2^+. Dans la première partie on décrit le laser de spectroscopie ainsi que la référence de fréquence sur laquelle le laser est asservi. Dans la deuxième partie, on décrit la cavité de haute finesse placée sous vide qui permet d'augmenter la probabilité de transition à deux photons. On présente ensuite les résultats obtenus avec cette cavité. En particulier on détermine la puissance intra-cavité, ce qui nous permet d'estimer le taux de transition à deux photons attendu et de montrer qu'il sera possible d'observer la transition.

7.1 Source laser pour la spectroscopie

Afin de mesurer la fréquence de transition à deux photons $(v=0,L=2) \rightarrow (v=1,L=2)$ dans H_2^+ avec une précision de l'ordre de 10^{-12}, il faut un laser spectralement fin et accordable à 9,166 μm. Dans ce domaine de l'infrarouge il existe trois types de sources laser continues : les lasers à CO_2, les lasers à cascade quantique [125] (QCL) et les diodes laser au sel de plomb [126]. Les lasers à CO_2 sont des lasers à gaz qui ont comme avantages d'être puissants, spectralement fins et très stables. Néanmoins, la raie du CO_2 la plus proche (9R42) de la transition qui nous intéresse est décalée de 1,655 GHz [32]. Ces lasers ayant une accordabilité de l'ordre de ± 50 MHz, il ne peuvent donc pas être directement utilisés pour la spectroscopie. Les lasers QCL eux sont accordables sur environ 300 GHz, néanmoins ils possèdent un spectre d'émission de plusieurs MHz de large en fonctionnement libre. Il est possible de réduire cette largeur d'émission en asservissant en phase un QCL sur une référence de fréquence étroite et stable, un laser à CO_2 par exemple ou un peigne de fréquence [127, 128].

En 2007 un montage a été réalisé par Bielsa et al. [129] permettant d'asservir en phase un QCL sur un laser à CO_2, combinant ainsi les qualités spectrales d'un laser à CO_2 et l'accordabilité d'un laser QCL. Nous avons récemment remis en route ce montage que nous allons décrire succinctement. Pour plus de détails sur ce montage, se référer à la thèse de F. Bielsa [32].

7.1.1 Le laser à cascade quantique

Le QCL que nous utilisons est un prototype de la marque Alpes Laser (modèle SBCW496DN). Il fonctionne en régime monomode continu et est monté dans un cryostat à azote liquide (77 K). Ainsi refroidi il peut délivrer jusqu'à 150 mW à une longueur d'onde allant de 9,16 μm à 9,24 μm. Ses accordabilités en température et en courant sont respectivement 3 GHz/K et 150 MHz/mA. Le cryostat n'est pas stabilisé en température. La température de fonctionnement résulte d'un équilibre entre le chauffage par le courant d'injection du QCL et le refroidissement de l'azote liquide. Pour un courant d'alimentation de $\sim$ 700 mA la température du QCL se stabilise autour de 81 K et le laser délivre 100 mW à 9,166 μm, la longueur d'onde qui nous intéresse pour la spectroscopie.

Le spectre d'émission du QCL en fonctionnement libre a une largeur d'environ 3 à 5 MHz et présente un jitter à basse fréquence sur plus de 10 MHz.

7.1.2 La référence de fréquence

Le laser à CO_2 que nous utilisons est un laser à gaz (mélange CO_2-He-N_2) monomode mesurant 1 m de long. Le gaz à basse pression (13 Torr) est excité par une double décharge produite par une alimentation haute tension. L'enceinte du laser est refroidie par une circulation d'eau à 15 °. La cavité du laser est composée d'un miroir R_{max} à 9,2 μm et d'un réseau de 150 traits/mm en configuration de Littrow. En fonctionnement sur la raie 9R42 nous avons obtenu jusqu'à $\sim$ 1 W de puissance en sortie du laser. Le spectre d'émission du laser CO_2 a une largeur de raie de l'ordre de 3 kHz et ne dérive que très lentement (moins de 1 MHz/s).

Afin d'utiliser le laser à CO_2 comme référence de fréquence, il est stabilisé sur une raie d'absorption saturée de l'acide formique (HCOOH) à 32 708 391 980,5 MHz (cette fréquence a été mesurée par Bielsa et al. dans l'article [130] avec une incertitude relative de 1 kHz) sondée en cavité Fabry-Perot. Un AOM en double passage à 64 MHz permet de décaler la fréquence du laser de 128 MHz afin de faire coïncider le maximum d'émission du CO_2 avec une raie de l'acide formique. La cavité Fabry-Perot est asservie à résonance sur le laser à CO_2. Pour cela, la longueur de la cavité est modulée à 33 kHz et le signal transmis par la cavité est démodulé à l'harmonique 1 pour obtenir un signal d'erreur utilisé pour asservir la cavité à résonance avec le laser à CO_2.

La fréquence du faisceau qui sonde l'acide formique est modulée à 5,67 kHz à l'aide du modulateur acousto-optique à 64 MHz, avec une profondeur de modulation de 50 kHz. Le signal transmis par la cavité est démodulé à l'harmonique 3 à 17 kHz. Le signal d'erreur obtenu permet d'asservir le laser à CO_2 sur la raie moléculaire, avec une résolution de l'ordre de 1 kHz.

7.1.3 Asservissement du QCL sur le CO_2

La fréquence du QCL est finalement asservie en phase sur la fréquence du laser à CO_2 en réalisant un battement entre ces deux sources. Cette technique présente plusieurs intérêts :

- l'asservissement possède une large bande passante,
- il n'y a pas besoin de moduler la fréquence du laser QCL,
- la possibilité d'accorder continument la fréquence du QCL en modifiant la fréquence du signal de référence délivré par un synthétiseur.

On prélève environ 5 mW du laser QCL (à l'aide d'un modulateur acousto-optique à 40 MHz) et 50 mW du laser à CO_2 afin de réaliser un battement à la fréquence $f_0 \simeq 1{,}7$ GHz sur un photo-détecteur rapide (HgCdZnTe) à température ambiante polarisé à -5 V afin d'augmenter sa bande passante. Le signal de battement est filtré en passe-haut au-dessus de 700 MHz et est divisé par 8 à l'aide d'un diviseur de fréquence rapide (modèle MC12093). La comparaison de phase avec un signal de référence provenant d'un synthétiseur RF est effectuée à $f_0/8 \simeq 200$ MHz à l'aide d'un détecteur phase/fréquence (modèle MCH12140) et d'un filtre passe bas à 100 MHz (BLP100 Minicircuit). La très haute fréquence de battement permet d'avoir un signal d'erreur avec une très grande bande passante. La boucle d'asservissement est finalement fermée par un correcteur de type proportionnel-intégrateur.

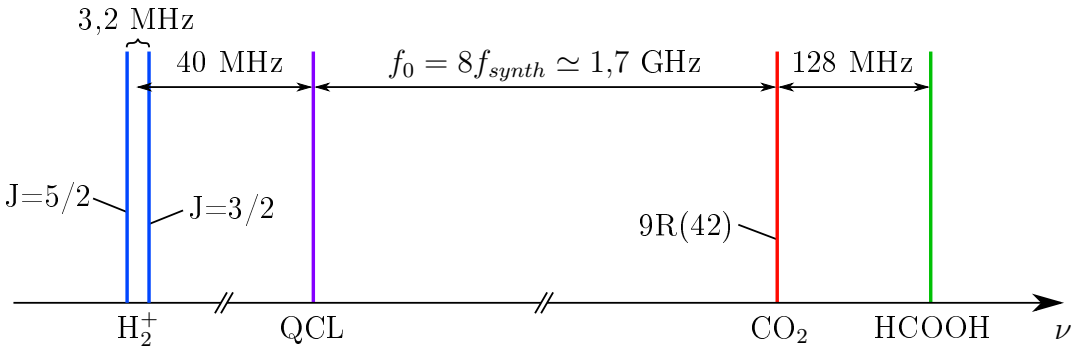

Fig 7.1: *Positions relatives des fréquences des transitions* $|v = 0, L = 2, J\rangle \rightarrow |v' = 1, L' = 2, J'\rangle$ *où* $J = J' = 3/2$ *ou* $5/2$ *dans* H_2^+*, de la fréquence du QCL, de la raie 9R(42) du laser à* CO_2 *et de la raie de l'acide formique.*

En conclusion il a été montré que ce montage permet de transférer les qualités spectrales du laser à CO_2 au laser QCL [129, 32]. On obtient ainsi une source spectralement fine, stable et accordable continument, adaptée à notre expérience de spectroscopie à haute résolution. Sur la figure 7.1 on représente les positions relatives des différents éléments introduits précédemment. Toutes les fréquences sont référencées au système international grâce au signal à 100 MHz en provenance du SYRTE [131]. Les fréquences des deux raies qui nous intéressent pour notre expérience sont données dans le tableau 1.4 du chapitre 1. On en déduit les deux valeurs de la fréquence du signal de référence de la comparaison de phase provenant

du synthétiseur RF qui permettent de sonder les deux raies $|v = 0, L = 2, J\rangle \rightarrow |v' = 1, L' = 2, J'\rangle$ où $J = J' = 3/2$ ou $5/2$, les résultats sont donnés dans le tableau 7.1.

J	f_{synth} (MHz)
3/2	201,779
5/2	202,183

Tableau 7.1: *Fréquences du signal de référence de la comparaison de phase permettant de sonder les deux raies :* $|v = 0, L = 2, J\rangle \rightarrow |v' = 1, L' = 2, J'\rangle$ *où* $J = J' = 3/2$ *ou* $5/2$ *dans* H_2^+.

Pour réaliser la spectroscopie de l'ion H_2^+, le QCL doit être couplé à une cavité de haute finesse que nous allons décrire dans la suite.

7.2 Cavité de haute finesse pour la spectroscopie

La spectroscopie des ions H_2^+ se fait dans une cavité Fabry-Perot de haute finesse installée autour du piège linéaire dans l'enceinte à vide. La cavité de haute finesse est nécessaire pour deux raisons. Premièrement, la surtension dans la cavité permet d'augmenter considérablement la probabilité de transition à 2 photons (proportionnelle au carré de l'intensité). Deuxièmement, les deux faisceaux contrapropageants étant intrinsèquement colinéaires, la cavité permet d'éliminer totalement l'effet Doppler du premier ordre.

Cette cavité doit répondre à plusieurs critères. Tout d'abord elle doit être compatible ultra vide afin de pouvoir être installée dans l'enceinte à vide. Ensuite la surtension donc la finesse doit être la plus élevée possible afin de maximiser le taux de transition à deux photons. De plus il doit être possible de balayer au moins un intervalle spectral libre de la cavité afin de s'assurer de pouvoir coupler un mode longitudinal TEM_{00} de la cavité avec le laser de spectroscopie. Finalement le waist dans la cavité doit être comparable à la taille du nuage d'ions afin d'illuminer tous les ions H_2^+ mais aussi le plus petit possible afin d'augmenter l'intensité lumineuse et donc, à nouveau, le taux de transition.

Dans cette partie nous allons décrire la cavité et ce qui a été fait afin de répondre aux différents critères cités ci-dessus.

7.2.1 Conception de la cavité

Le mode dans la cavité La cavité est constituée de deux miroirs identiques de rayons de courbure R_c et de réflectivité $r^2 = R$, séparés d'une distance d (fig.

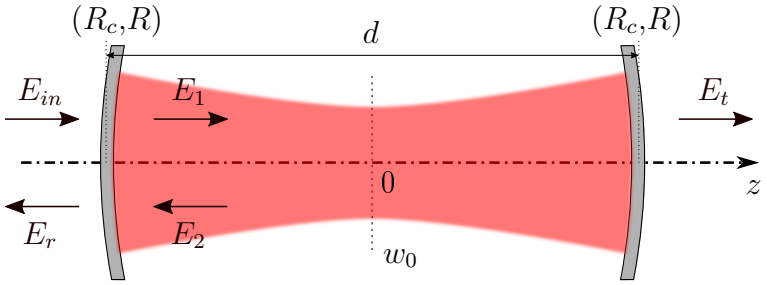

Fig 7.2: *Schéma de la cavité Fabry-Perot de spectroscopie. La cavité est composée de deux miroirs identiques, séparés d'une distance d, de rayons de courbure R_c et de réfléctivité R. En rouge on représente le mode dans la cavité (pas à l'échelle). Les flèches noires représentent les champs électriques au niveau des miroirs.*

7.2). Par symétrie on sait que si la cavité est stable, elle va posséder un waist en son centre. De plus cette symétrie permet de simplifier l'étude de la cavité en se restreignant à une moitié de la cavité. En utilisant le même formalisme que dans la partie 5.3.2 on détermine l'équation du paramètre $q(z=0)=q$, en fonction des propriétés de la cavité, qui s'écrit :

$$\frac{1}{q-d/2} = \frac{1}{q+d/2} - \frac{2}{R_c}. \tag{7.1}$$

Sachant que en $z=0$ on a $q = i\frac{\pi w_0^2}{\lambda}$ on détermine le waist w_0 dans la cavité, qui s'écrit :

$$w_0^2 = \frac{\lambda}{2\pi}\sqrt{d(2R_c-d)} \tag{7.2}$$

Cette équation nous permet de déterminer le critère de stabilité de la cavité comme étant $0 < d < 2R_c$. Afin d'avoir un petit waist qui match la taille du nuage d'ions et compte tenu de la taille du piège à ion qui fixe $d \geq 10\,\text{cm}$, nous avons choisi de travailler dans une configuration quasi-concentrique en choisissant $R_c = 10\,\text{cm}$ et $d = 17{,}9\,\text{cm}$, ce qui donne à $9{,}17\,\mu\text{m}$, $w_0 = 300\,\mu\text{m}$.

Balayage de la cavité L'intervalle spectral libre (ISL) de la cavité est $ISL = \frac{c}{2d} = 838\,\text{MHz}$. Balayer un ISL de la cavité signifie modifier la taille de la cavité de $\Delta d = \lambda/2 = 4{,}6\,\mu\text{m}$. Nous avons choisi de pouvoir balayer 2 ISL. Pour cela l'un des miroirs de la cavité est fixé sur un empilement de 4 céramiques piézoélectriques cylindriques identiques compatibles ultra vide de la marque Noliac (modèle NAC2124). Le tableau 7.2 donne les caractéristiques d'une céramique et d'un empilement de 4 céramiques.

Céramique	d_{out} (mm)	d_{in} (mm)	e (mm)	Δe (μm)	V_{max} (V)	C (nF)
NAC2124	15	9	2	3,3	200	510
4×NAC2124	15	9	8	9,9	200	1380

Tableau 7.2: *Caractéristiques des céramiques piézoélectriques où d_{out} est le diamètre extérieur, d_{in} le diamètre intérieur, e est l'épaisseur, Δe est le déplacement maximal, V_{max} la tension maximale applicable sur la céramique et C est la capacité.*

Pour asservir la cavité il est important que la capacité de la céramique soit la plus faible possible afin d'augmenter la bande passante. L'empilement des 4 céramiques NAC2124 de 8 mm est suffisant afin de corriger les dérives lentes de la cavité mais risque de ne pas être capable de corriger les dérives rapides. Pour remédier à cela, le deuxième miroir de la cavité est fixé à une seule céramique NAC2124 d'épaisseur 2 mm.

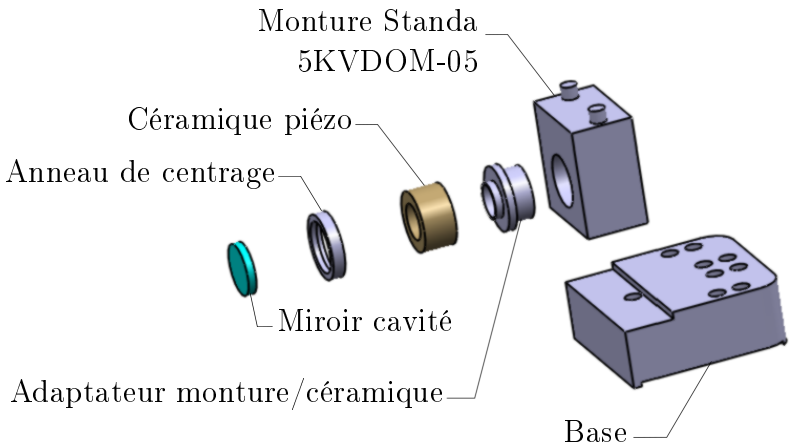

Fig 7.3: *Vue éclatée de l'ensemble des éléments constituant un miroir de la cavité.*

La figure 7.3 montre une vue éclatée de l'ensemble des composants permettant de monter un miroir de la cavité. Le miroir est collé sur la céramique piézoélectrique et est centré à l'aide d'un anneau de centrage, la céramique est ensuite collée à un adaptateur permettant de fixer le tout dans une monture de miroir STANDA compatible ultra vide (modèle 5KVDOM-05), la monture est ensuite vissée sur une base qui vient se fixer dans l'enceinte à vide. On utilise une colle céramique compatible ultra vide (Ceramabond 569). Les deux miroirs de la cavité sont montés de manière identique, la seule différence étant l'épaisseur des céramiques.

Une fois la cavité montée on y injecte la lumière du QCL à l'aide de deux lentilles afin de faire coïncider le mode du faisceau avec celui de la cavité.

7.2.2 Calcul de l'intensité intra-cavité

On utilise des miroirs fabriqués par II-VI Incorporated. Le constructeur annonce une réflectivité $R > 99{,}8\,\%$, néanmoins les miroirs peuvent se dégrader rapidement en dehors du vide (la cavité a d'abord été testée à l'air). C'est pourquoi on considère la réflectivité R des miroirs comme une inconnue. De plus le modèle utilisée dans cette partie prend en compte des pertes dans les miroirs telles que $R+T+P=1$ où T est le coefficient de transmission du miroir et P le facteur de pertes. On considère qu'il n'y a pas d'autres pertes dans la cavité, en effet nous avons mentionné dans la partie sur le piège que la distance entre les électrodes a été choisie de manière à ne pas diaphragmer le faisceau pour ne pas introduire de perte dans la cavité.

Champs électriques Écrivons les relations entre les différents champs électriques (fig. 7.2) au niveau des miroirs de la cavité. On note Φ le déphasage introduit par la cavité, on a :

$$\begin{aligned} E_r &= \sqrt{T}E_2 - \sqrt{R}E_{in}, \quad E_2 = \sqrt{R}e^{i\Phi}E_1, \\ E_1 &= \sqrt{T}E_{in} + \sqrt{R}E_2, \quad E_t = \sqrt{T}e^{i\Phi/2}E_1. \end{aligned} \tag{7.3}$$

On déduit de ces équations le facteur de finesse de la cavité $\mathcal{F}$, qui s'écrit :

$$\mathcal{F} = \frac{\pi\sqrt{R}}{1-R} \tag{7.4}$$

Cette relation montre que la mesure de la finesse donne accès à R. On en déduit aussi trois grandeurs importantes permettant de caractériser la cavité, la surtension $\mathcal{S}$ de la cavité, définie comme le rapport de la puissance dans la cavité sur la puissance en entrée de la cavité, la transmission $\mathcal{T}$ de la cavité, définie comme le rapport de la puissance en sortie sur la puissance en entrée de la cavité et la réflexion $\mathcal{R}$ de la cavité, définie comme le rapport de la puissance réfléchie par la cavité sur la puissance en entrée de la cavité, qui s'écrivent à résonance ($\Phi/2 = n\pi$) :

$$\mathcal{S}(R,P) = \frac{1-P-R}{(1-R)^2}, \tag{7.5}$$

$$\mathcal{T}(R,P) = \frac{1}{\left(1+\dfrac{P}{1-R-P}\right)^2}, \tag{7.6}$$

$$\mathcal{R}(R,P) = \frac{1}{\left(1+\dfrac{1-P-R}{P}\right)^2}. \tag{7.7}$$

La grandeur qui nous intéresse ici est la surtension, malheureusement c'est la seule grandeur qui ne peut pas être mesurée directement. Afin de déterminer la surtension, on mesure dans un premier temps la finesse de la cavité qui nous permet de déduire R, puis on mesure soit la transmission soit la réflexion de la cavité afin de déterminer P. Les signaux sont détectés sur des photodiodes HgCdTe refroidies à 77 K par l'intermédiaire d'un cryostat à azote liquide ce qui permet de supprimer le rayonnement IR thermique ambiant. Notons que la transmission de la cavité ne peut être mesurée qu'en maintenant la cavité à résonance, on décrira dans la partie suivante l'asservissement de la cavité.

Nous avons mesuré une finesse de $\mathcal{F} = 1631$. Grâce à l'équation 7.4 on en déduit le coefficient de réflexion des miroirs $R = 99{,}81\,\%$ en très bon accord avec les

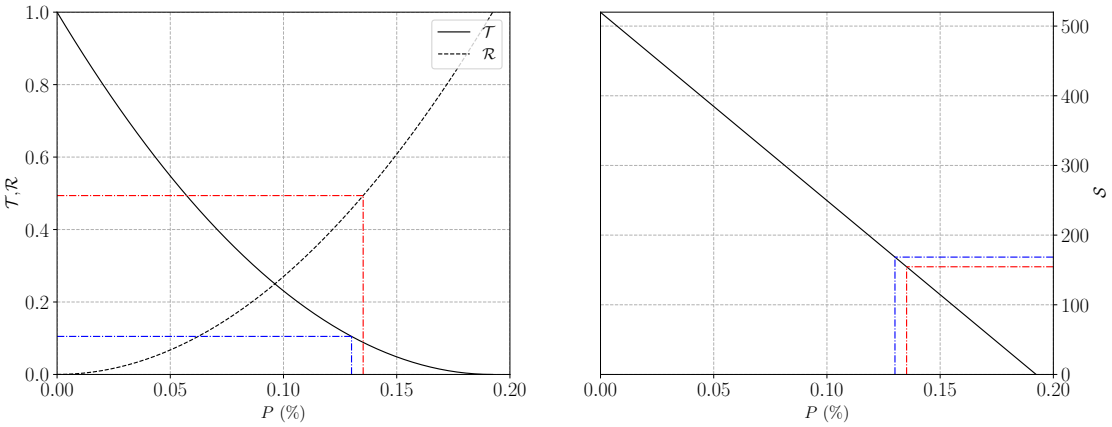

Fig 7.4: *Gauche : transmission et réflexion de la cavité à résonance en fonction des pertes dans les miroirs. Pointillés bleus : détermination graphique des pertes grâce à la mesure expérimentale de la transmission ; pointillés rouges : détermination graphique des pertes grâce à la mesure expérimentale de la réflexion. Droite : surtension dans la cavité en fonction des pertes dans les miroirs. Pointillés bleus : détermination graphique de la surtension grâce à la mesure expérimentale de la transmission ; pointillés rouges : détermination graphique de la surtension grâce à la mesure expérimentale de la réflexion.*

données du fabricant. Nous avons ensuite mesuré la transmission de la cavité, on trouve $\mathcal{T} = 0{,}105$, on en déduit (voir équation 7.6) le coefficient de perte des miroirs $P = 0{,}130\,\%$ et le coefficient de transmission des miroirs $T = 0{,}06\,\%$. On détermine ainsi la surtension dans la cavité (voir équation 7.5) $\mathcal{S} = 168$. On reprend la même démarche en mesurant la réflexion de la cavité, on trouve $\mathcal{R} = 0{,}49$ ce qui donne (voir équation 7.7) $P = 0{,}135\,\%$ et $T = 0{,}055\,\%$ et on en déduit $\mathcal{S} = 155$. Cette démarche est représentée graphiquement sur la figure 7.4 où l'on trace à gauche les coefficients de réflexion et transmission de la cavité en fonction du coefficient de perte des miroirs et à droite la surtension à nouveau en fonction du coefficient de perte des miroirs. Les pertes sont relativement importantes et la surtension réelle est loin de l'optimum $\mathcal{F}/\pi = 520$ dans le cas où $P = 0$.

En conclusion, en prenant la moyenne des deux mesures le coefficient de surtension dans la cavité est estimé à $\mathcal{S} = (161 \pm 7)$. En entrée de la cavité nous avons mesuré une puissance maximale de $\mathcal{P}_{in} = 20\,\mathrm{mW}$. On a donc une puissance intra-cavité de $\mathcal{P}_{cav} = (3{,}2 \pm 0{,}1)\,\mathrm{W}$. On détermine ainsi l'intensité du faisceau à $9{,}17\,\mu\mathrm{m}$ au centre de la cavité, qui s'écrit :

$$I = \frac{2\mathcal{P}_{cav}}{\pi w_0^2} = (23 \pm 1)\,\mathrm{W/mm^2}. \tag{7.8}$$

7.2.3 Asservissement de la cavité

Le schéma de principe de l'asservissement est présenté fig.7.5. La longueur de la cavité est modulée, par l'intermédiaire de la céramique rapide, à la fréquence

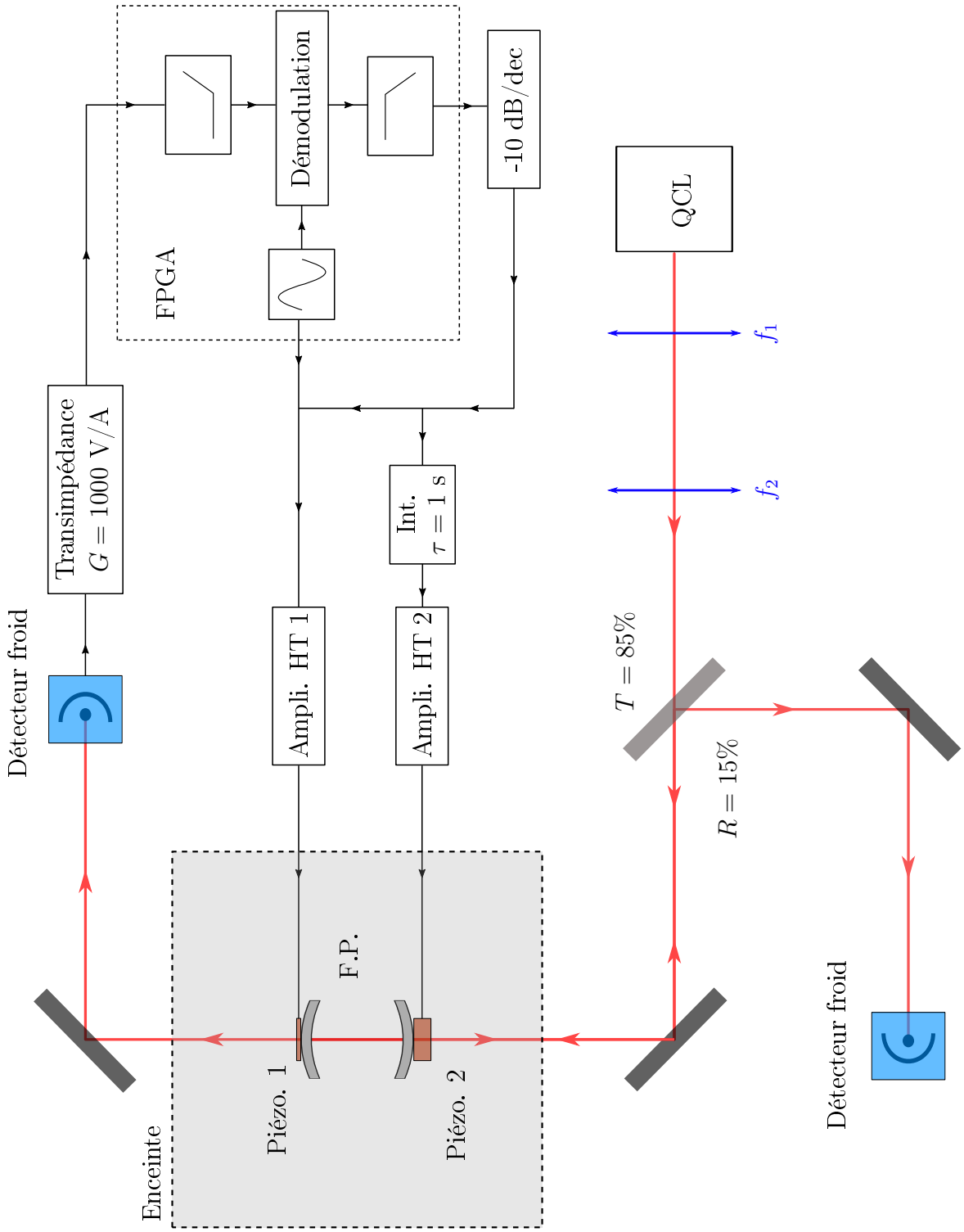

Fig 7.5: *Schéma de l'injection de la cavité de spectroscopie et de l'asservissement.* $f_1 = f_2 = 50$ mm, *Piézo. 1 : céramique piézoélectrique lente* $C = 1380$ nF, *Piézo. 2 : céramique piézoélectrique rapide* $C = 510$ nF, *Int. : filtre intégrateur de constante de temps* $\tau = 1$ s.

$f_{mod} = 85{,}46\,\mathrm{kHz}$ (on utilise une résonance de la céramique) avec une profondeur de modulation la plus faible possible. Le signal de transmission de la cavité est détecté à l'aide du détecteur froid et d'un amplificateur opérationnel monté en transimpédance de gain 1000 V/A. Le signal obtenu est envoyé vers un module FPGA (modèle Redpitaya) dans lequel il est filtré numériquement puis démodulé à la fréquence f_{mod} (on utilise pour cela la bibliothèque Python *Pyrpl* développée par L. Neuhaus [132]). Le signal d'erreur ainsi obtenu est ensuite envoyé vers un correcteur à $-10\,\mathrm{dB/dec}$ semblable à celui de la partie 5.3 afin de générer le signal de correction. Le signal de correction est ensuite appliqué sur la céramique rapide par l'intermédiaire d'un ampli haute tension. Une partie du signal de correction est envoyé vers un intégrateur pur de constante de temps $\tau \sim 1\,\mathrm{s}$ puis appliqué à la céramique lente par l'intermédiaire d'un deuxième amplificateur HT afin de corriger les dérives lentes de la cavité.

7.2.4 Probabilité de transition

Il est maintenant possible d'estimer le taux d'excitation à 2 photons discutée en introduction. On rappelle que le taux de transition à 2 photons à résonance entre deux niveaux vibrationnels v et v' est donné par :

$$\Gamma = \left(\frac{4\pi a_0^3}{\hbar c}\right)^2 (1+\epsilon)^4 \frac{4}{\Gamma_f} I^2 \left[{}^S Q_{q_1,q_2}\right]^2, \tag{7.9}$$

où a_0 est le rayon de Bohr, Γ_f est la largeur effective de la transition, $\epsilon = \frac{1}{1+2m_p/me} \simeq 1$, I est l'intensité du laser et $\left[{}^S Q_{q_1,q_2}\right]^2$ est la probabilité de transition à deux photons moyenne (sans unité).

Pour la transition qui nous intéresse ($v = 0, L = 2 \rightarrow v = 1, L = 2$) on a $\left[{}^S Q_{q_1,q_2}\right]^2 \simeq 0{,}19$ (voir fig. 1.4). Les états liés de l'ion H_2^+ sont des états métastables car les transitons à 1 photon entre ces états sont strictement interdites. Dans ce cas, la largeur de la transition sera limitée par les conditions expérimentales, la largeur naturelle étant extrêmement fine. Les ions H_2^+ étant piégés on peut négliger les effets dus au temps de transit et considérer que seule la largeur du laser de spectroscopie va limiter la largeur de la transition. Pour le QCL asservi sur le laser à CO_2 on suppose une largeur spectrale de $\Gamma_f/2\pi = 10\,\mathrm{kHz}$ (sur-estimée). En prenant pour l'intensité du laser les résultats obtenus en partie 7.2.2, on obtient un taux de transition à 2 photons pour la transition ($v = 0, L = 2 \rightarrow v = 1, L = 2$) à $9{,}17\,\mu\mathrm{m}$, qui vaut :

$$\Gamma_{0,1} = 23\,\mathrm{s}^{-1}. \tag{7.10}$$

Le taux de transition est donc suffisamment grand pour saturer la transition à deux photons dans le piège linéaire où la durée de vie des ions H_2^+ est généralement de plusieurs minutes. En commençant avec 40 % (60 %) des ions dans le niveau hyperfin $J = 3/2$ ($J = 5/2$), la saturation de la transition conduira à avoir 20 % (30 %) des ions dans l'état excité $v = 1$. Nous avons vu dans le chapitre 3 que pour environ 2,5 s de temps de dissociation, 80 % des ions dans l'état $v = 1$ sont dissociés.

Finalement, on peut espérer observer une diminution d'environ 16 % (24 %) du nombre d'ions H_2^+ lors de la spectroscopie REMPD.

Chapitre 8

Conclusion

Dans cette thèse nous avons présenté la conception, le développement et les avancées d'une expérience de spectroscopie à deux photons sans effet Doppler de la transition ro-vibrationelle $(v = 0, L = 2) \rightarrow (v = 1, L = 2)$ à 9,17 μm des ions moléculaires H_2^+ piégés et refroidis visant à obtenir une mesure spectroscopique directe de la constante fondamentale μ_{pe}. Nous avons montré qu'il est nécessaire de refroidir les ions H_2^+ afin de diminuer la contribution de l'effet Doppler du second ordre à la précision de la mesure de la fréquence de transition. Nous avons discuté de l'impossibilité de refroidir ces ions par laser et de l'impossibilité de détecter la transition par fluorescence car les transitions dipolaires électriques sont interdites. Nous avons alors présenté le refroidissement sympathique qui permet de refroidir les ions H_2^+ par l'intermédiaire d'ions Be^+ refroidis par laser.

Nous disposons d'un piège linéaire radio-fréquence opérationnel dans lequel nous avons montré que nous sommes capables de piéger des ions Be^+ créés soit par impact électronique soit par photo-ionisation à 213 nm d'un jet d'atome de béryllium. Nous avons ensuite piégé des ions H_2^+ créés dans l'état ro-vibrationnel $(v=0, L=2)$ par la méthode REMPI à 303 nm. Finalement nous avons montré que nous sommes capables d'obtenir ainsi des ions moléculaires H_2^+ froids sélectionnés en état interne.

Nous avons ensuite présenté la méthode de spectroscopie REMPD qui permet de détecter la transition en photo-dissociant sélectivement les ions H_2^+ se trouvant dans l'état $(v = 1, L = 2)$. Nous avons testé la photo-dissociation à 213 nm d'ions H_2^+ créés par impact électronique dans un piège hyperbolique. Nous avons ensuite élaboré un modèle qui permet de comprendre les résultats obtenus. Nous avons finalement testé la photo-dissociation d'ions H_2^+ créés par la méthode REMPI. Les résultats obtenus montrent qu'on produit ainsi des ions H_2^+ sélectionnés en état ro-vibrationnel $(v=0, L=2)$ en proportion importante $(> 80\,\%)$.

Nous avons ensuite présenté la source laser à 313 nm qui permet de faire du refroidissement Doppler des ions Be^+. Elle consiste à effectuer la somme de fréquence de deux lasers à fibres infrarouges afin d'obtenir un faisceau à 626 nm, ou à réaliser un montage maître-esclave de deux diodes lasers à 626 nm puis à réaliser un doublage

en fréquence dans une cavité Fabry Perot en anneau qui comprend un cristal non-linéaire de BBO afin d'obtenir un faisceau à 313 nm. Nous obtenons ainsi jusqu'à 26 mW à 313 nm pour 380 mW de 626 nm à l'entrée de la cavité.

Nous avons ensuite présenté les résultats liés au refroidissement sympathique et aux cristaux de Coulomb. Nous avons montré que nous sommes capables de créer de manière reproductible des cristaux composés d'ions Be^+ et H_2^+ refroidis. Puis nous avons présenté une méthode qui nous permet de compter le nombre d'ions Be^+ et une méthode qui nous permet de mesurer le nombre d'ions H_2^+ et ainsi d'obtenir un signal de spectroscopie REMPD.

Nous avons ensuite présenté la source de spectroscopie à 9,17 μm qui est un laser à cascade quantique asservi en phase sur un laser à CO_2 lui même asservi sur une raie moléculaire dans l'acide formique. Enfin, nous avons présenté la conception et la réalisation d'une cavité de haute finesse, placée sous-vide autour des ions et mesuré une finesse de l'ordre de 1600. La surtension de la cavité nous permet d'obtenir une intensité lumineuse au niveau des ions de 23 W/mm^2, suffisante pour permettre l'excitation de la transition ro-vibrationnelle à 2 photons $(v=0,L=2) \rightarrow (v=1,L=2)$ de l'ion H_2^+ avec un taux de 23 s^{-1}.

Finalement, l'ensemble des résultats obtenus indique que la recherche d'un premier signal de spectroscopie peut être lancée.

Perspectives

A l'heure actuelle, la fréquence absolue de la référence de fréquence à $= 9{,}17\,\mu$m reposant sur une absorption saturée dans l'acide formique a été mesurée avec une incertitude de 1 kHz [130]. Dans un futur assez proche, nous avons dans l'intention d'utiliser comme référence de fréquence un peigne de fréquence femto-seconde, ce qui permettra d'augmenter la précision de la mesure ainsi que de s'affranchir de la cavité à acide formique.

Une fois la mesure de la fréquence de transition $(v = 0,L = 2) \rightarrow (v = 1,L = 2)$ achevée, nous avons comme perspective d'observer d'autres raies dans H_2^+. En particulier les raies $(v = 0,L = 0) \rightarrow (v = 1,L = 0)$ et $(v = 6,L) \rightarrow (v = 7,L)$ de manière à obtenir un ensemble de raies dans les ions moléculaires hydrogène (avec les mesures faites à Amsterdam et Düsseldorf sur HD^+) qui permettent une détermination indépendante des constantes R_∞, μ_{pe}, μ_{dp}, r_p et r_d, et puissent contribuer à l'ajustement des constantes fondamentales de la physique.

Finalement, un projet plus lointain est de réaliser de la spectroscopie par logique quantique [133, 134, 135, 136, 137] sur l'ion H_2^+, potentiellement beaucoup plus précise, sans espoir de comparaison avec la théorie, mais utile pour tester la dérive des constantes fondamentales.

Annexes

Annexe A

Matrices ABCD dioptre quelconque

Il est difficile de trouver dans la littérature la matrice ABCD de la traversée d'un milieu d'indice n_1 vers un milieu d'indice n_2 à angle d'incidence quelconque. Malheureusement pour nous car nous avons besoin de cette matrice afin de décrire le mode de notre cavité de doublage. C'est pourquoi nous allons dans cette partie déterminer cette matrice. Pour cela, on revient dans un premier temps sur la définition des matrices ABCD de l'optique géométrique, puis on rappelle la loi de Snell-Descartes vectorielle pour finalement déterminer cette matrice.

A.1 Matrices ABCD : optique géométrique

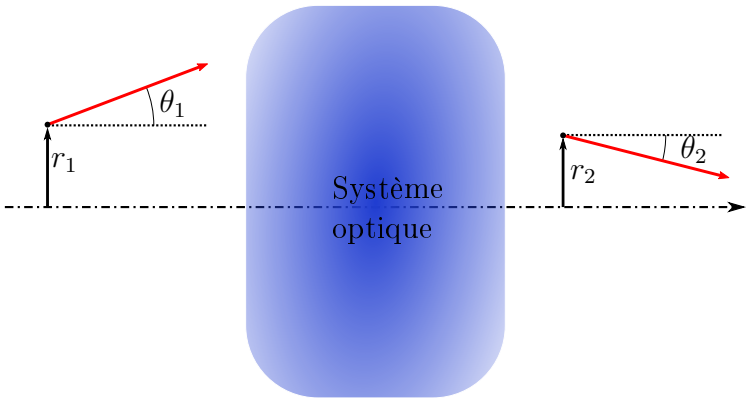

Fig A.1: *Traversée d'un système optique.*

Soit un rayon $\vec{v}$, caractérisé par sa distance à l'axe optique r_1 et par son angle θ_1 avec l'axe optique, traversant un système optique. On appelle $\vec{r}$ le rayon en sortie du système optique, caractérisé par r_2 et θ_2 (figure A.1). On voit souvent la matrice ABCD définie comme la matrice de passage entre le vecteur (r_1,θ_1) et (r_2,θ_2) telle que :

$$\begin{pmatrix} r_2 \\ \theta_2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix} \begin{pmatrix} r_1 \\ \theta_1 \end{pmatrix} \tag{A.1}$$

où les termes diagonaux sont sans dimension, B et C ayant respectivement les dimensions d'une longueur et de l'inverse d'une longueur.

Ceci est vrai uniquement dans l'approximation de Gauss, i.e. lorsque les rayons lumineux possèdent un angle d'incidence très faible par rapport à l'axe optique, et en sont peu éloignés. En réalité, il convient d'écrire cette matrice comme la matrice de passage entre une variation $(\delta r, \delta\theta)$ (de petite amplitude, $\delta r \ll 1$ et $\delta\theta \ll 1$) du rayon incident et une variation $(\delta r', \delta\theta')$ du faisceau après la traversée (figure A.2).

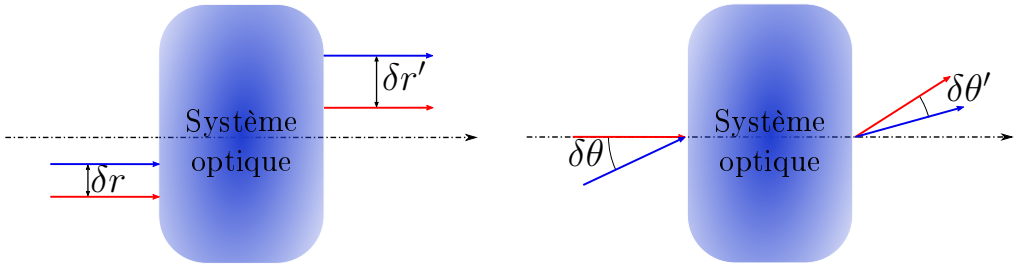

Fig A.2: *Traversée d'un système optique.*

Dans ce cas, M est définie de la façon suivante :

$$\begin{pmatrix} \delta r' \\ \delta\theta' \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \delta r \\ \delta\theta \end{pmatrix} \tag{A.2}$$

A.2 Loi de Snell-Descartes vectorielle

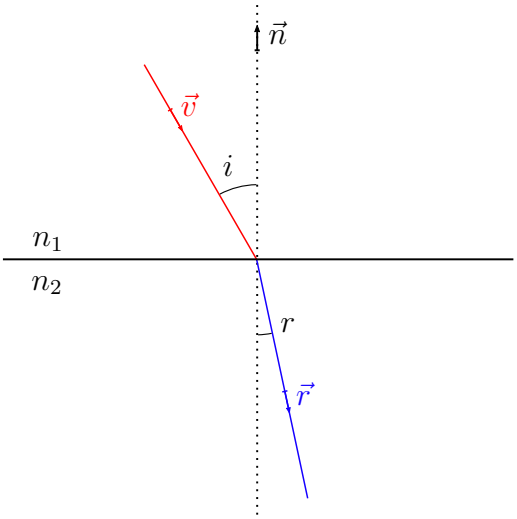

Fig A.3: *Loi de la réfraction de Snell-Descartes.*

Soit un rayon traversant une surface séparant deux milieux d'indices n_1 et n_2, on note $\vec{v}$ (où $\vec{v}$ est unitaire) la direction du faisceau incident, $\vec{r}$ la direction du faisceau réfracté, $\vec{n}$ le vecteur normal et unitaire au dioptre, i l'angle entre $\vec{v}$ et $\vec{n}$ et r l'angle entre $\vec{r}$ et $\vec{n}$ (figure A.3). On peut montrer que $\vec{r}$ s'écrit :

$$\vec{r} = \frac{n_1}{n_2}\vec{v} + \left(\frac{n_1}{n_2}\cos i - \cos r\right)\vec{n} \tag{A.3}$$

A.3 Matrices ABCD : traversée d'un dioptre

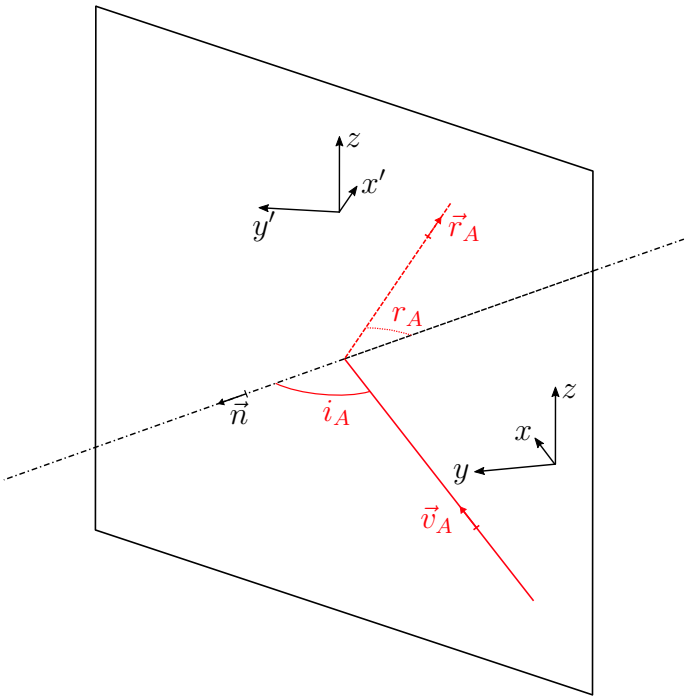

Fig A.4: *Traversée d'un dioptre séparant deux milieux d'indices n_1 et n_2.*

Notons tout d'abord que dans le cas de la traversée d'un dioptre, il n'y a pas de symétrie de révolution autour de l'axe optique, il faut donc décomposer le problème selon deux plans : le plan tangentiel et le plan sagittal. Sur la figure A.4, (Oxy) est le plan tangentiel. Le plan sagittal, lui, change selon qu'on se trouve avant ou après le dioptre : avant le dioptre c'est le plan (xz), après le dioptre, c'est le plan $(x'z)$. Dans chaque plan, nous allons utiliser la définition des matrices ABCD (A.2) afin de déterminer la matrice de passage correspondant. Pour cela on part du rayon incident $\vec{v}_A$ faisant un angle i_A ($i_A = i$) avec la normale et du rayon réfracté $\vec{r}_A$ faisant un angle r_A ($r_A = r$) avec la normale. Ensuite, on sépare le problème en deux cas. Dans le premier cas, le rayon incident est translaté de δr par rapport à l'axe optique (avec $\delta\theta = 0$) et dans le deuxième cas, il est tourné d'un angle $\delta\theta$ (avec $\delta r = 0$) autour de la normale au plan tangentiel (ou sagittal). La formule A.2 donne alors quatre équations permettant de déterminer A, B, C et D, les coefficients de la matrice M, à l'aide de considérations géométriques, des relations de Snell-Descartes et des identifications :

$$\begin{cases} \delta r' = A\delta r \\ \delta\theta' = C\delta r \end{cases} \quad \text{et} \quad \begin{cases} \delta r' = B\delta\theta \\ \delta\theta' = D\delta\theta \end{cases}$$

A.3.1 Plan tangentiel - M^{tan}

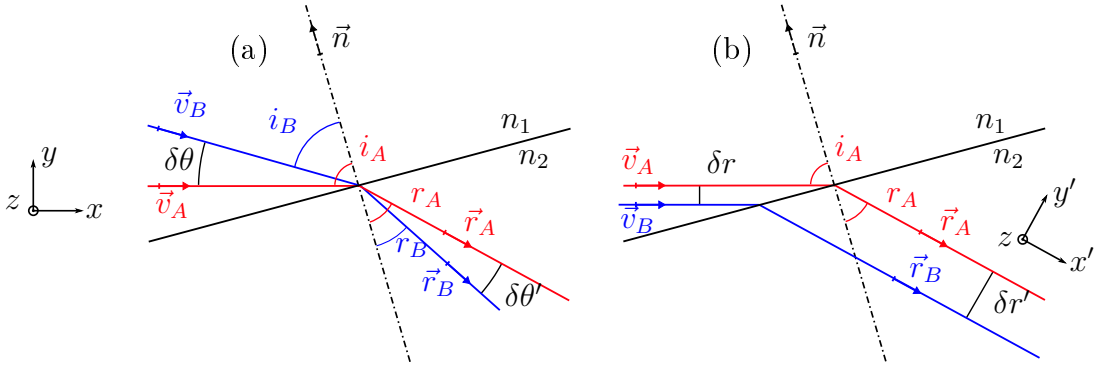

Fig A.5: *(a) Comportement du faisceau réfracté après avoir tourné le faisceau incident autour de l'axe z. (b) Comportement du faisceau réfracté après avoir translaté le faisceau incident dans le plan horizontal.*

La figure A.5(a) montre que pour $\delta r' = 0$ et $\delta\theta$ donné, on a $\delta r' = 0$, $i_B = i_A - \delta\theta$ et $r_B = r_A - \delta\theta'$. Un développement limité à l'ordre 1 en $\delta\theta$ et $\delta\theta$ de la loi de Snell-Descartes $n_1 \sin i_B = n_2 \sin r_B$ donne $\delta\theta' = \frac{n_1}{n_2}\frac{\cos i}{\cos r}\delta r$, d'où $B^{tan} = 0$ et $D^{tan} = \frac{n_1}{n_2}\frac{\cos i}{\cos r}$.

La figure A.5(b) permet de voir que pour $\delta\theta = 0$ et δr donné, on a $\delta r' = \frac{\cos r}{\cos i}\delta r$ et $\delta\theta' = 0$, d'où $A^{tan} = \frac{\cos r}{\cos i}$ et $C^{tan} = 0$.

In fine, on peut écrire la matrice de passage d'un dioptre dans le plan tangentiel :

$$M^{tan} = \begin{pmatrix} \frac{\cos r}{\cos i} & 0 \\ 0 & \frac{n_1}{n_2}\frac{\cos i}{\cos r} \end{pmatrix} \tag{A.4}$$

A.3.2 Plan sagittal - M^{sag}

La figure A.6 montre que pour $\delta\theta = 0$ et δr donné, on a $\delta r' = \delta r$ et $\delta\theta' = 0$, ce qui donne $A^{sag} = 1$ et $C^{sag} = 0$.

Le cas $\delta r = 0$ et $\delta\theta$ donné, illustré sur la figure A.7 est le plus compliqué. On a toujours $n_1 \sin i_B = n_2 \sin r_B$ et $n_1 \sin i_A = n_2 \sin r_A$ et on voit que $\delta r' = 0$, ce qui donne $B^{sag} = 0$. Le vecteur $\vec{v}_B$ étant la résultante d'une rotation du vecteur $\vec{v}_A$ d'angle $\delta\theta$ autour de l'axe y, on a $\cos i_B = \cos\delta\theta \cos i_A$. Afin de trouver la relation entre $\delta\theta$ et $\delta\theta'$, on écrit les relations de Snell-Descartes vectorielles (équation A.3) pour les vecteurs $\vec{r}_A$ et $\vec{r}_B$:

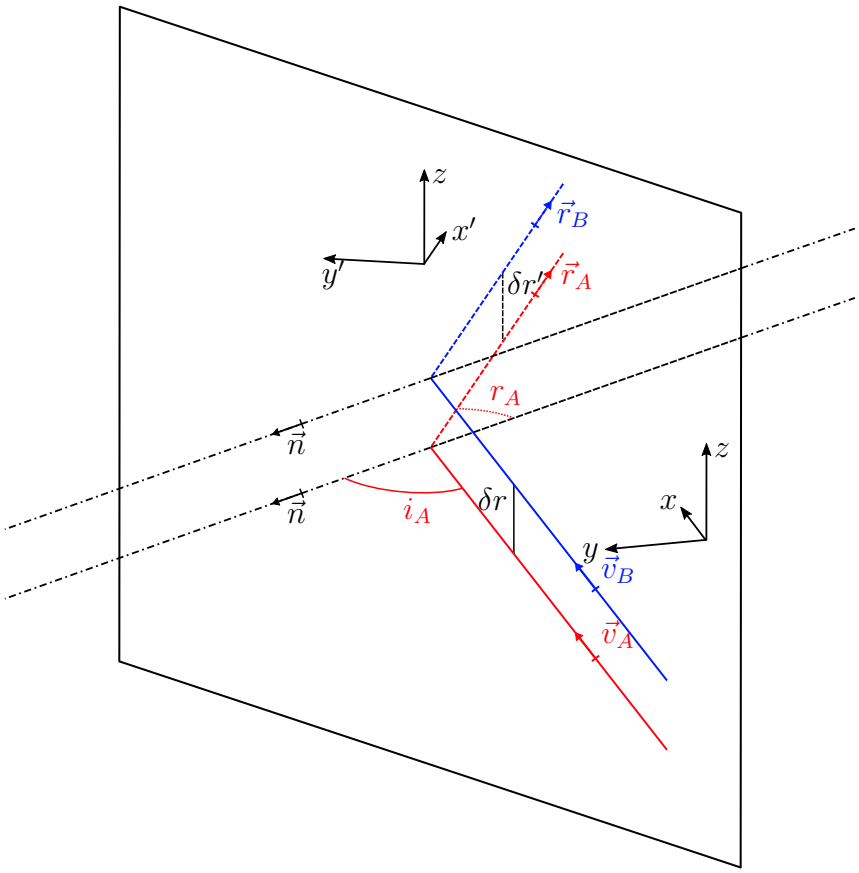

Fig A.6: *Comportement du faisceau réfracté après avoir translaté le faisceau incident dans le plan sagittal.*

$$\vec{r}_A = \frac{n_1}{n_2}\vec{v}_A + \left(\frac{n_1}{n_2}\cos i_A - \cos r_A\right)\vec{n} \quad \text{et} \quad \vec{r}_B = \frac{n_1}{n_2}\vec{v}_B + \left(\frac{n_1}{n_2}\cos i_B - \cos r_B\right)\vec{n}$$

On utilise ensuite soit la propriété du produit scalaire ($\cos\delta\theta' = \vec{r}_A.\vec{r}_B$) soit la propriété du produit vectoriel ($|\sin\delta\theta'| = \|\vec{r}_A \times \vec{r}_B\|$), pour obtenir l'équation reliant $\delta\theta$ et $\delta\theta'$. En exprimant $\cos\delta\theta'$ (ou $\sin\delta\theta'$) en fonction des composantes des vecteurs $\vec{v}_A$, $\vec{v}_B$, $\vec{r}_A$ et $\vec{r}_B$ dans la base xyz et en faisant un développement limité d'ordre en $\delta\theta$ et $\delta\theta'$ d'ordre 2 à l'aide de Mathematica, on obtient $\delta\theta'^2 = \left(\frac{n_1}{n_2}\right)^2 \delta\theta^2$, ce qui donne $D^{sag} = \frac{n_1}{n_2}$.

In fine, on peut écrire la matrice de passage d'un dioptre dans le plan sagittal :

$$M^{sag} = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & \dfrac{n_1}{n_2} \end{pmatrix} \tag{A.5}$$

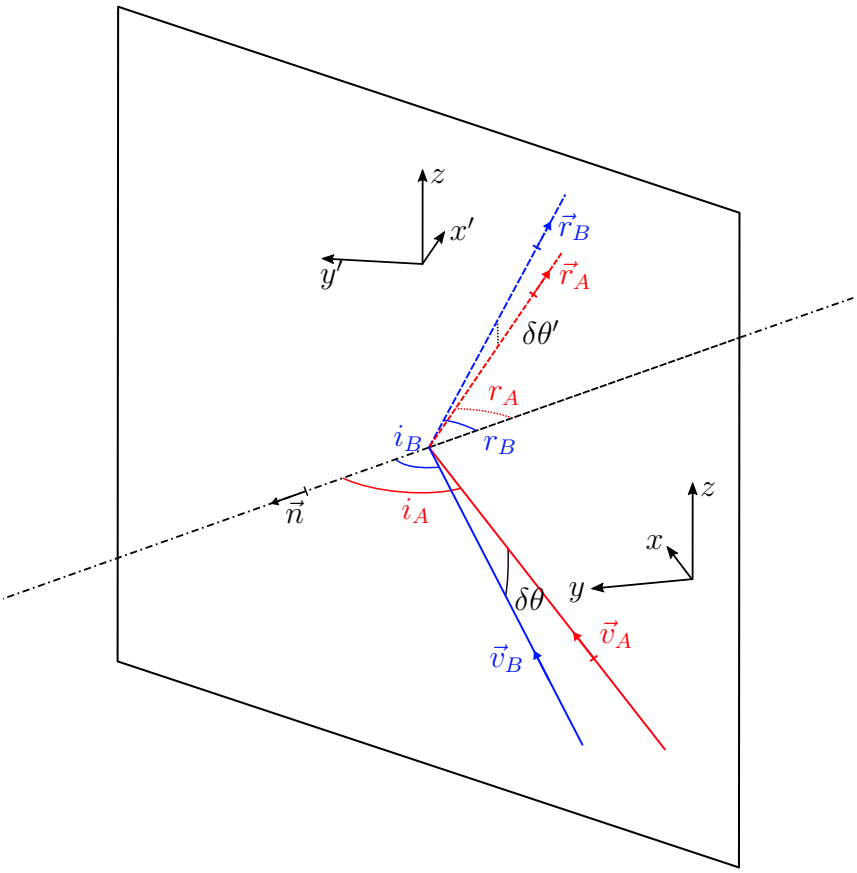

Fig A.7: *Comportement du faisceau réfracté après avoir tourné le faisceau incident autour de l'axe y.*

A.3.3 Cas particulier : incidence de Brewster

Dans le cas particulier de l'incidence à l'angle de Brewster ($i = i_{Br}$), on a la relation : $\tan(i_{Br}) = n_2/n_1$. On peut prouver sans difficulté que dans ce cas, $\frac{\cos(r_{Br})}{\cos(i_{Br})} = \frac{n_2}{n_1}$. En remplaçant dans les matrices A.4 et A.5, on trouve :

Passage d'un milieu d'indice n_1 à un milieu d'indice n_2 à incidence de Brewster	$M_t^{tan}(n_1,n_2) = \begin{pmatrix} \frac{n_2}{n_1} & 0 \\ 0 & \left(\frac{n_1}{n_2}\right)^2 \end{pmatrix}$	$M_t^{sag}(n_1,n_2) = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & \frac{n_1}{n_2} \end{pmatrix}$

Annexe B

Filtre à -10 dB/dec

On présente sur la figure B.1 le schéma électrique du montage qui permet d'asservir la cavité de doublage. Le circuit se décompose en deux parties, la première permet d'effectuer la soustraction des signaux obtenus sur les deux photo-diodes du montage Hänsch-Couillaud et permet de créer un signal d'erreur, la deuxième est le filtre à -10 dB/dec, dont le diagramme de Bode est tracé sur la figure B.2, qui permet de créer le signal de correction appliqué à la céramique piézoélectrique d'un des miroirs de la cavité.

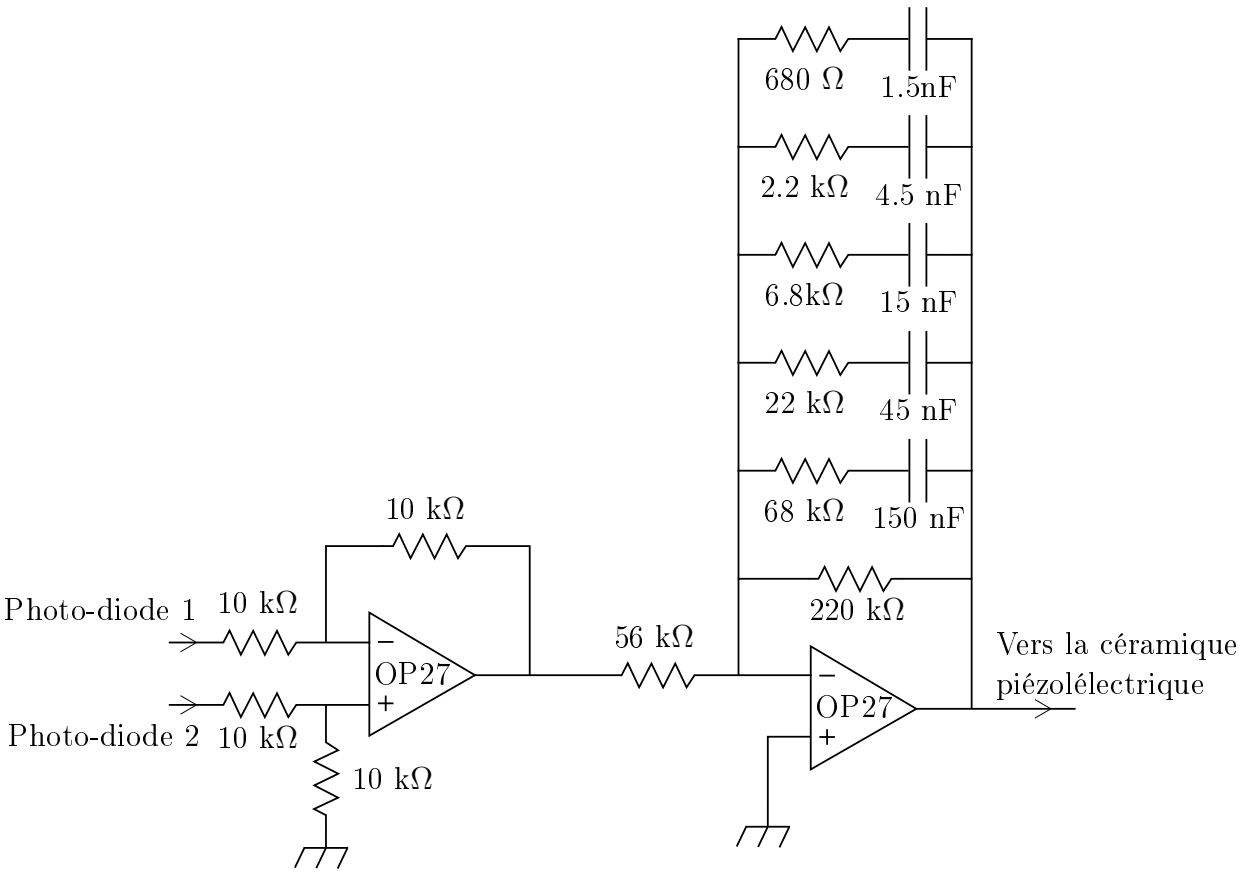

Fig B.1: *Gauche : montage soustracteur permettant de créer le signal d'erreur. Droite : filtre correcteur à -10 dB/dec.*

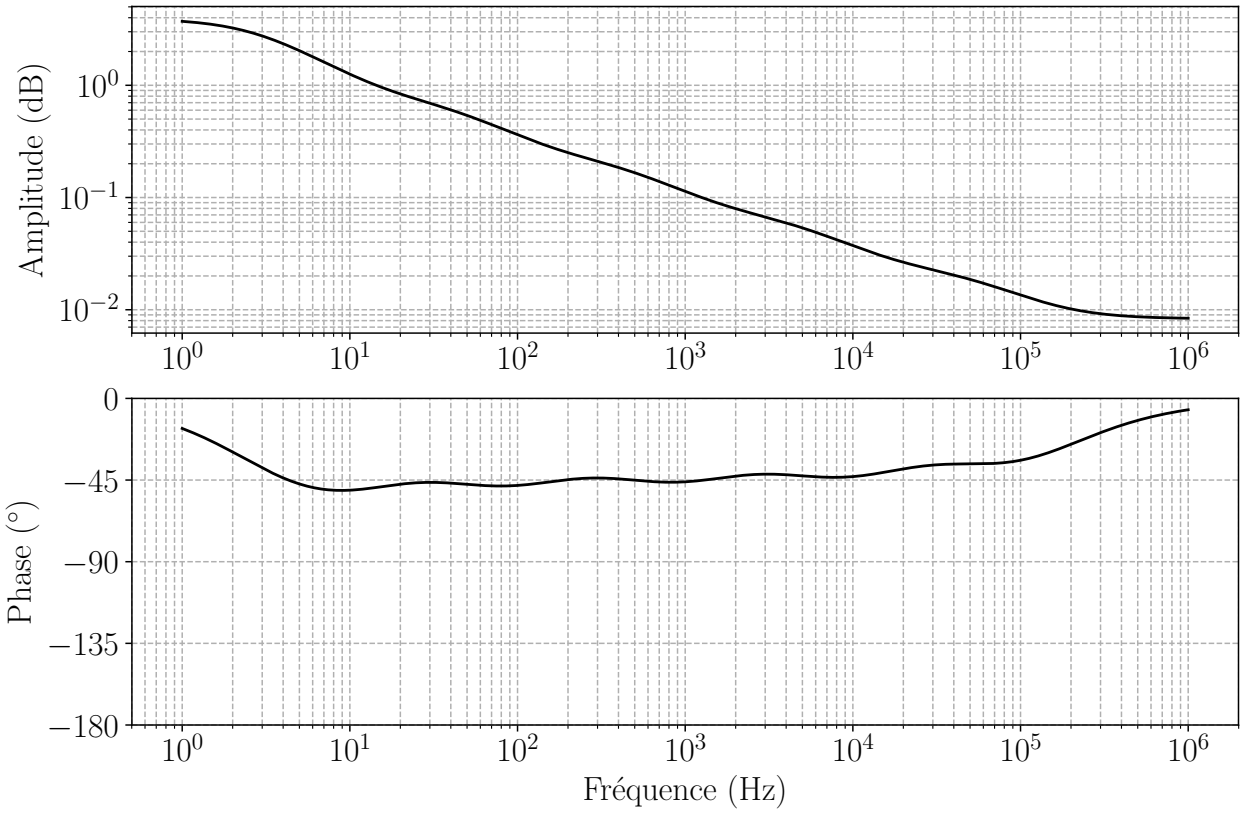

Fig B.2: *Diagramme de Bode du filtre à -10 dB/dec.*

Bibliographie

[1] F. Heiße, F. Köhler-Langes, S. Rau, J. Hou, S. Junck, A. Kracke, A. Mooser, W. Quint, S. Ulmer, G. Werth, K. Blaum, and S. Sturm. High-Precision Measurement of the Proton's Atomic Mass. *Phys. Rev. Lett.*, **119**:033001, 2017.

[2] S. Sturm, F. Köhler, J. Zatorski, A. Wagner, Z. Harman, G. Werth, W. Quint, C. H. Keitel, and K. Blaum. High-precision measurement of the atomic mass of the electron. *Nature*, **506**:467–470, 2014.

[3] CODATA. `https://pml.nist.gov/cgi-bin/cuu/Value?mpsme`. Accessed: 16/09/2019.

[4] Peter J Mohr, David B Newell, and Barry N Taylor. Codata recommended values of the fundamental physical constants: 2014. *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, 45(4):043102, 2016.

[5] William H. Wing, George A. Ruff, Willis E. Lamb, and Joseph J. Spezeski. Observation of the infrared spectrum of the hydrogen molecular ion HD^+. *Phys. Rev. Lett.*, **36**:1488–1491, 1976.

[6] Laurent Hilico, Nicolas Billy, Benoit Grémaud, and Dominique Delande. Polarisabilities, light shifts and two-photon transition probabilities between j=0 states of the H_2^+ and D_2^+ molecular ions. *Journal of Physics B*, 34:1, 2001.

[7] J.-Ph. Karr, L. Hilico, J. C. J. Koelemeij, and V. I. Korobov. Hydrogen molecular ions for improved determination of fundamental constants. *Phys. Rev. A*, **94**:050501, 2016.

[8] S Schiller and V Korobov. Tests of time independence of the electron and nuclear masses with ultracold molecules. *Physical Review A*, 71(3):032505, 2005.

[9] Vladimir I. Korobov, L. Hilico, and J.-Ph. Karr. Fundamental Transitions and Ionization Energies of the Hydrogen Molecular Ions with few ppt Uncertainty. *Phys. Rev. Lett.*, **118**:233001, 2017.

[10] Alan Carrington and Richard A Kennedy. Vibration-rotation spectroscopy of the HD^+ ion near the dissociation limit: Iii. measurements of the ν= 17-15 and 20-17 bands: demonstration of an asymmetric electron distribution. *Molecular Physics*, 56(4):935–975, 1985.

[11] Alan Carrington, Iain R McNab, and Christine A Montgomerie. Vibration-rotation spectroscopy of the HD^+ ion near the dissociation limit: Iv. nuclear

hyperfine structure in the v= 18–16 band. *Molecular Physics*, 64(4):679–689, 1988.

[12] Alan Carrington, Iain R McNab, and Christine A Montgomerie. Spectroscopy of the hydrogen molecular ion. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 22(22):3551, 1989.

[13] JCJ Koelemeij, B Roth, A Wicht, I Ernsting, and S Schiller. Vibrational spectroscopy of HD^+ with 2-ppb accuracy. *Physical Review Letters*, 98(17):173002, 2007.

[14] U Bressel, A Borodin, J Shen, M Hansen, I Ernsting, and S Schiller. Manipulation of individual hyperfine states in cold trapped molecular ions and application to HD^+ frequency metrology. *Physical Review Letters*, 108(18):183003, 2012.

[15] J Biesheuvel, J-Ph Karr, L Hilico, KSE Eikema, W Ubachs, and JCJ Koelemeij. Probing qed and fundamental constants through laser spectroscopy of vibrational transitions in HD^+. *Nature communications*, 7:10385, 2016.

[16] J Biesheuvel, J-Ph Karr, L Hilico, KSE Eikema, W Ubachs, and JCJ Koelemeij. High-precision spectroscopy of the HD^+ molecule at the 1-ppb level. In *Exploring the World with the Laser*, pages 267–307. Springer, 2018.

[17] Soroosh Alighanbari, Michael Georg Hansen, VI Korobov, and Stephan Schiller. Rotational spectroscopy of cold and trapped molecular ions in the lamb–dicke regime. *Nature Physics*, 14(6):555, 2018.

[18] HG Dehmelt and KB Jefferts. Alignment of the H_2^+ molecular ion by selective photodissociation. i. *Physical Review*, 125(4):1318, 1962.

[19] CB Richardson, K-B Jefferts, and HG Dehmelt. Alignment of the H_2^+ molecular ion by selective photodissociation. ii. experiments on the radio-frequency spectrum. *Physical Review*, 165(1):80, 1968.

[20] Keith B Jefferts. Hyperfine structure in the molecular ion H_2^+. *Physical Review Letters*, 23(26):1476, 1969.

[21] Andrew DJ Critchley, Alan N Hughes, and Iain R McNab. Direct measurement of a pure rotation transition in H_2^+. *Physical Review Letters*, 86(9):1725, 2001.

[22] Andrew DJ Critchley, Alan N Hughes, Iain R McNab, and Richard E Moss. Energy shifts and forbidden transitions in H_2^+ due to electronic g/u symmetry breaking. *Molecular Physics*, 101(4-5):651–661, 2003.

[23] ZW Fu, EA Hessels, and SR Lundeen. Determination of the hyperfine structure of $H_2^+(\nu= 0, r= 1)$ by microwave spectroscopy of high-l n= 27 Rydberg states of H_2. *Physical Review A*, 46(9):R5313, 1992.

[24] PL Jacobson, DS Fisher, CW Fehrenbach, WG Sturrus, and SR Lundeen. Determination of the dipole polarizabilities of $H_2^+(0, 0)$ and $D_2^+(0, 0)$ by microwave spectroscopy of high-l Rydberg states of H_2 and D_2. *Physical Review A*, 56(6):R4361, 1997.

[25] PL Jacobson, RA Komara, WG Sturrus, and SR Lundeen. Microwave spectroscopy of heliumlike Rydberg states of H_2 and D_2: Determinations of the dipole polarizabilities of H_2^+ andD_2^+ ground states. *Physical Review A*, 62(1):012509, 2000.

[26] Christa Haase, Maximilian Beyer, Christian Jungen, and Frédéric Merkt. The fundamental rotational interval of para-H_2^+ by MQDT-assisted Rydberg spectroscopy of H_2. *The Journal of chemical physics*, 142(6):064310, 2015.

[27] Maximilian Beyer and Frédéric Merkt. Observation and calculation of the quasibound rovibrational levels of the electronic ground state of H_2^+. *Physical review letters*, 116(9):093001, 2016.

[28] P. Bowe, L. Hornekær, C. Brodersen, M. Drewsen, J. S. Hangst, and J. P. Schiffer. Sympathetic Crystallization of Trapped Ions. *Phys. Rev. Lett.*, **82**:2071–2074, 1999.

[29] VI Korobov, Laurent Hilico, and J-Ph Karr. Hyperfine structure in the hydrogen molecular ion. *Physical Review A*, 74(4):040502, 2006.

[30] Vladimir I Korobov, Laurent Hilico, and J-Ph Karr. Relativistic corrections of m α^6 (m/ M) order to the hyperfine structure of the H_2^+ molecular ion. *Physical Review A*, 79(1):012501, 2009.

[31] Vladimir I Korobov, JCJ Koelemeij, L Hilico, and J-Ph Karr. Theoretical hyperfine structure of the molecular hydrogen ion at the 1 ppm level. *Physical Review Letters*, 116(5):053003, 2016.

[32] Frank Bielsa. *Spectroscopie vibrationelle à deux photons de l'Ion H_2^+: Développement d'une source laser à 9.166 μm.* PhD thesis, Université Pierre-et-Marie-Curie, 2007.

[33] Jean-Philippe Karr, Franck Bielsa, Albane Douillet, Jofre Pedregosa Gutierrez, Vladimir I. Korobov, and Laurent Hilico. Vibrational spectroscopy of $H_2{}^+$: Hyperfine structure of two-photon transitions. *Phys. Rev. A*, **77**, 2008.

[34] Jean-Philippe Karr, Vladimir I Korobov, and Laurent Hilico. Vibrational spectroscopy of H_2^+: Precise evaluation of the Zeeman effect. *Physical Review A*, 77(6):062507, 2008.

[35] H.G. Dehmelt. Radiofrequency spectroscopy of stored ions i: Storage. volume 3 of *Advances in Atomic and Molecular Physics*, pages 53 – 72. Academic Press, 1968.

[36] P. Ghosh. *Ion Traps.* Oxford Science Publications, 2005.

[37] L Hilico, N Billy, B Grémaud, and D Delande. Polarizabilities, light shifts and two-photon transition probabilities between J=0 states of the H_2^+ and D_2^+ molecular ions. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, **34**(3):491, 2001.

[38] J-Ph Karr. H_2^+ and HD^+: candidates for a molecular clock. *Journal of Molecular Spectroscopy*, 300:37–43, 2014.

[39] Jean-Philippe Karr, Sayan Patra, Jeroen CJ Koelemeij, Johannes Heinrich, Nicolas Sillitoe, Albane Douillet, and Laurent Hilico. Hydrogen molecular ions: new schemes for metrology and fundamental physics tests. In *Journal of Physics: Conference Series*, volume 723, page 012048. IOP Publishing, 2016.

[40] P. Pérez, D. Banerjee, F. Biraben, D. Brook-Roberge, M. Charlton, P. Cladé, P. Comini, P. Crivelli, O. Dalkarov, P. Debu, A. Douillet, G. Dufour, P. Dupré, S. Eriksson, P. Froelich, P. Grandemange, S. Guellati, R. Guérout, J. M. Heinrich, P.-A. Hervieux, L. Hilico, A. Husson, P. Indelicato, S. Jonsell, J.-P. Karr, K. Khabarova, N. Kolachevsky, N. Kuroda, A. Lambrecht, A. M. M. Leite, L. Liszkay, D. Lunney, N. Madsen, G. Manfredi, B. Mansoulié, Y. Matsuda, A. Mohri, T. Mortensen, Y. Nagashima, V. Nesvizhevsky, F. Nez, C. Regenfus, J.-M. Rey, J.-M. Reymond, S. Reynaud, A. Rubbia, Y. Sacquin, F. Schmidt-Kaler, N. Sillitoe, M. Staszczak, C. I. Szabo-Foster, H. Torii, B. Vallage, M. Valdes, D. P. Van der Werf, A. Voronin, J. Walz, S. Wolf, S. Wronka, and Y. Yamazaki. The GBAR antimatter gravity experiment. *Hyperfine Interactions*, **233**(1):21–27, 2015.

[41] Laurent Hilico, Jean-Philippe Karr, Albane Douillet, Paul Indelicato, Sebastian Wolf, and Ferdinand Schmidt Kaler. Preparing single ultra-cold antihydrogen atoms for free-fall in gbar. In *International Journal of Modern Physics: Conference Series*, volume 30, page 1460269. World Scientific, 2014.

[42] Nicolas Sillitoe, Jean-Philippe Karr, Johannes Heinrich, Thomas Louvradoux, Albane Douillet, and Laurent Hilico. Sympathetic cooling simulations with a variable time step. In *Proceedings of the 12th International Conference on Low Energy Antiproton Physics (LEAP2016)*, page 011014, 2017.

[43] Jochen Walz and Theodor W Hänsch. A proposal to measure antimatter gravity using ultracold antihydrogen atoms. *General Relativity and Gravitation*, 36(3):561–570, 2004.

[44] F.M. Penning. Die Glimmentladung bei niedrigem Druck zwischen koaxialen Zylindern in einem axialen Magnetfeld. *Physica*, 3(9):873 – 894, 1936.

[45] W. Paul, H. P. Reinhard, and U. von Zahn. Das elektrische Massenfilter als Massenspektrometer und Isotopentrenner. *Zeitschrift für Physik*, **152**(2):143–182, 1958.

[46] Johannes Heinrich. *A Be^+ ion trap for H_2^+ spectroscopy.* PhD thesis, 2018. Thèse de doctorat dirigée par Hilico, Laurent Physique Sorbonne université 2018.

[47] J. Pedregosa, C. Champenois, M. Houssin, and M. Knoop. Anharmonic contributions in real RF linear quadrupole traps. *International Journal of Mass Spectroscopy*, **290**(2-3):100–105, 2009.

[48] D. R. Denison. Operating Parameters of a Quadrupole in a Grounded Cylindrical Housing. *The Journal of Vacuum Science and Technology*, **8**(1):266–269, 1971.

[49] N.W. McLachlan. *Theory and application of Mathieu functions.* (Dover Publications). Dover Publications, 1964.

[50] Martina Knoop, Niels Madsen, and Richard C. Thompson. *Trapped Charged Particles.* World Scientific, 2016.

[51] J. D. Siverns, L. R. Simkins, S. Weidt, and W. K. Hensinger. On the application of radio frequency voltages to ion traps via helical resonators. *Appl Phys B*, **107**(4):921–934, 2012.

[52] N. Kjaergaard, L. Hornekaer, A.M. Thommesen, Z. Videsen, and M. Drewsen. Isotope selective loading of an ion trap using resonance-enhanced two-photon ionization. *Applied Physics B*, 71(2):207–210, Aug 2000.

[53] Sebastian Wolf, Dominik Studer, Klaus Wendt, and Ferdinand Schmidt-Kaler. Efficient and robust photo-ionization loading of beryllium ions. *Applied Physics B*, 124(2):30, 2018.

[54] M. T. Smith, K. T. Taylor, and C. W. Clark. R-matrix theory of two-photon absorption: application of beryllium and carbon. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 25:3985–4004, October 1992.

[55] R Moccia and P Spizzo. Two-photon transition probabilities and photoionisation cross section calculations of Be. *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics*, 18(17):3555, 1985.

[56] David R Lide. Handbook of chemistry and physics 84-th edition, 2003.

[57] Lisa Schmöger, OO Versolato, Maria Schwarz, M Kohnen, Alexander Windberger, Baptist Piest, Stefanie Feuchtenbeiner, Jofre Pedregosa-Gutierrez, T Leopold, Peter Micke, et al. Coulomb crystallization of highly charged ions. *Science*, 347(6227):1233–1236, 2015.

[58] Tobias Schneider, B Roth, H Duncker, I Ernsting, and S Schiller. All-optical preparation of molecular ions in the rovibrational ground state. *Nature Physics*, 6(4):275, 2010.

[59] ST Pratt. Excited-state molecular photoionization dynamics. *Reports on progress in physics*, 58(8):821, 1995.

[60] S.T. Pratt, P.M. Dehmer, and J.L. Dehmer. Photoionization of excited molecular states. H_2 C^1 Π_u. *Chemical Physics Letters*, **105**(1):28 – 33, 1984.

[61] M. A. O'Halloran, S. T. Pratt, P. M. Dehmer, and J. L. Dehmer. Photoionization dynamics of H_2 C^1 Π_u: Vibrational and rotational branching ratios. *The Journal of Chemical Physics*, **87**(6):3288–3298, 1987.

[62] Xin Tong, Dieter Wild, and Stefan Willitsch. Collisional and radiative effects in the state-selective preparation of translationally cold molecular ions in ion traps. *Physical Review A*, 83(2):023415, 2011.

[63] Vu Quang Tran. *Towards high precision spectroscopy of hydrogen molecular ions H_2^+ and HD^+: Theory and Experiment.* PhD thesis, Université Pierre-et-Marie-Curie, 2013.

[64] Friedrich Von Busch and Gordon H Dunn. Photodissociation of H_2^+ and D_2^+ : Experiment. *Physical Review A*, 5(4):1726, 1972.

[65] Senem Kilic. *Le problème coulombien à trois corps: états liés, résonances et interaction avec la lumière vers la spectroscopie vibrationnelle dans H_2^+*. PhD thesis, Paris 6, 2005.

[66] WA Chupka and Morley E Russell. Photoionization study of ion–molecule reactions in mixtures of hydrogen and rare gases. *The Journal of Chemical Physics*, 49(12):5426–5437, 1968.

[67] Yoshiki Moriwaki, Maki Tachikawa, and Tadao Shimizu. Dependence of temperature of collision-cooled ions stored in an rf trap on trapping parameters. *Japanese journal of applied physics*, 35(2R):757, 1996.

[68] J-P Karr, Albane Douillet, and Laurent Hilico. Photodissociation of trapped H_2^+ ions for REMPD spectroscopy. *Applied Physics B*, 107(4):1043–1052, 2012.

[69] GH Dunn. Photodissociation of H_2^+ and D_2^+, theory and tables. Technical report, JILA Report, 1968.

[70] Yang Weijun, R Alheit, and G Werth. Vibrational population of H_2^+ after electroionization of thermal H_2. *Zeitschrift für Physik D Atoms, Molecules and Clusters*, 28(2):87–88, 1993.

[71] DA Church and HG Dehmelt. Radiative cooling of an electrodynamically contained proton gas. *Journal of Applied Physics*, 40(9):3421–3424, 1969.

[72] RD Knight and MH Prior. Laser scanning measurement of the density distribution of confined $^6li^+$ ions. *Journal of Applied Physics*, 50(5):3044–3049, 1979.

[73] Nicolas Sillitoe. *Production of state-selected H_2^+ ions and numerical simulations of sympathetic cooling in RF traps.* PhD thesis, Université Pierre-et-Marie-Curie, 2017.

[74] Theodor W Hänsch and Arthur L Schawlow. Cooling of gases by laser radiation. *Optics Communications*, 13(1):68–69, 1975.

[75] D. J. Wineland, R. E. Drullinger, and F. L. Walls. Radiation-Pressure Cooling of Bound Resonant Absorbers. *Phys. Rev. Lett.*, **40**:1639–1642, 1978.

[76] C. Cohen-Tannoudji. Atomic motion in laser light. In J. Dalibard, J.M. Raimond, and J. Zinn Justin, editors, *Fundamental Systems in Quantum Optics.* Elsevier Science Publisher B.V., 1992. Les Houches, Session LIII, 1990.

[77] Caroline Champenois. Trapping and cooling of ions. 10 2008.

[78] C. Monroe, D. M. Meekhof, B. E. King, S. R. Jefferts, W. M. Itano, D. J. Wineland, and P. Gould. Resolved-Sideband Raman Cooling of a Bound Atom to the 3D Zero-Point Energy. *Phys. Rev. Lett.*, **75**:4011–4014, 1995.

[79] Jannes B Wübbena, Sana Amairi, Olaf Mandel, and Piet O Schmidt. Sympathetic cooling of mixed-species two-ion crystals for precision spectroscopy. *Physical Review A*, 85(4):043412, 2012.

[80] Kristian Mølhave and Michael Drewsen. Formation of translationally cold MgH^+ and MgD^+ molecules in an ion trap. *Physical Review A*, 62(1):011401, 2000.

[81] B Roth, A Ostendorf, H Wenz, and S Schiller. Production of large molecular ion crystals via sympathetic cooling by laser-cooled Ba^+. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 38(20):3673, 2005.

[82] S. Vasilyev, A. Nevsky, I. Ernsting, M. Hansen, J. Shen, and S. Schiller. Compact all-solid-state continuous-wave single-frequency UV source with frequency stabilization for laser cooling of Be^+ ions. *Applied Physics B*, **103**(1), 2011.

[83] A. C. Wilson, C. Ospelkaus, A. P. VanDevender, J. A. Mlynek, K. R. Brown, D. Leibfried, and D. J. Wineland. A 750-mW, continuous-wave, solid-state laser source at 313 nm for cooling and manipulating trapped $^9Be^+$ ions. *Applied Physics B*, **105**:741–748, 2011.

[84] H. Ball, M. W. Lee, S. D. Gensemer, and M. J. Biercuk. A high-power 626 nm diode laser system for Beryllium ion trapping. *Rev. Sci. Instrum.*, 84:063107, 2013.

[85] G. Blume, O. Nedow, D. Feise, J. Pohl, and K. Paschke. Monolithic 626 nm single-mode AlGaInP DBR diode laser. *Opt. Express*, 21(18):21677–21684, Sep 2013.

[86] Steven A King, Tobias Leopold, Premjith Thekkeppatt, and Piet O Schmidt. A self-injection locked DBR laser for laser cooling of beryllium ions. *Applied Physics B*, 124(11):214, 2018.

[87] F. M. J. Cozijn, J. Biesheuvel, A. S. Flores, W. Ubachs, G. Blume, A. Wicht, K. Paschke, G. Erbert, and J. C. J. Koelemeij. Laser cooling of beryllium ions using a frequency-doubled 626 nm diode laser. *Opt. Lett.*, **38**(13):2370–2372, Jul 2013.

[88] J. C. J. Koelemeij, W. Hogervorst, and W. Vassen. High-power frequency stabilized laser for laser cooling of metastable helium at 389 nm. *Review of Scientific Instruments*, **76**(3):033104, 2005.

[89] S. Hannig, J. Mielke, J. A. Fenske, M. Misera, N. Beev, C. Ospelkaus, and P. O. Schmidt. A highly stable monolithic enhancement cavity for SHG generation in the UV. arXiv:1709.07188v1, 09 2017.

[90] Hsiang-Yu Lo, Joseba Alonso, Daniel Kienzler, Benjamin C. Keitch, Ludwig E. de Clercq, Vlad Negnevitsky, and Jonathan P. Home. All-solid-state continuous-wave laser systems for ionization, cooling and quantum state manipulation of beryllium ions. *Applied Physics B*, **114**(1), 2014.

[91] John Kerr. A new relation between electricity and light: Dielectrified media birefringent. *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science*, 50(332):337–348, 1875.

[92] John Kerr. A new relation between electricity and light: Dielectrified media birefringent (second paper). *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science*, 50(333):446–458, 1875.

[93] Robert W. Boyd. *Nonlinear Optics, Third Edition.* Academic Press, Inc., Orlando, FL, USA, 3rd edition, 2008.

[94] David Eimerl, L Davis, Stephan Velsko, E K. Graham, and A Zalkin. Optical, mechanical, and thermal properties of barium borate. *Journal of Applied Physics*, 62:1968 – 1983, 10 1987.

[95] Sophie Bourzeix. *Laser continu à 205 nm : application à la mesure du déplacement de Lamb dans l'hydrogène*. Theses, Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, January 1995.

[96] AV Smith. Snlo nonlinear optics code (ver. 60). *AS-Photonics, Albuquerque, USA*, 2013.

[97] G. D. Boyd and D. A. Kleinman. Parametric Interaction of Focused Gaussian Light Beams. *Journal of Applied Physics*, **39**(8):3597–3639, 1968.

[98] Jean-Jacques Zondy. Comparative theory of walkoff-limited type-II versus type-I second harmonic generation with gaussian beams. *Optics communications*, 81(6):427–440, 1991.

[99] H. Kogelnik and T. Li. Laser Beams and Resonators. *Applied Optics*, **5**(10):1550–1567, 1966.

[100] F. Träger. *Springer Handbook of Lasers and Optics*. Springer Handbook of Lasers and Optics. Springer New York, 2007.

[101] T. W. Hänsch and B. Couillaud. Laser Frequency Stabilization by Polarization Spectroscopy of a Reflecting Reference Cavity. *Optics Communications*, **35**:441–444, 1980.

[102] TM O'Neil and Daniel HE Dubin. Thermal equilibria and thermodynamics of trapped plasmas with a single sign of charge. *Physics of Plasmas*, 5(6):2163–2193, 1998.

[103] E Lo Pollock and Jean-Pierre Hansen. Statistical mechanics of dense ionized matter. II. equilibrium properties and melting transition of the crystallized one-component plasma. *Physical Review A*, 8(6):3110, 1973.

[104] Daniel HE Dubin. Theory of structural phase transitions in a trapped coulomb crystal. *Physical Review Letters*, 71(17):2753, 1993.

[105] F. Diedrich, E. Peik, J. M. Chen, W. Quint, and H. Walther. Observation of a Phase Transition of Stored Laser-Cooled Ions. *Phys. Rev. Lett.*, **59**:2931–2934, 1987.

[106] D. J. Wineland, J. C. Bergquist, Wayne M. Itano, J. J. Bollinger, and C. H. Manney. Atomic-Ion Coulomb Clusters in an Ion Trap. *Phys. Rev. Lett.*, **59**:2935–2938, 1987.

[107] M. Drewsen, C. Brodersen, L. Hornekær, and J. S. Hangst. Large Ion Crystals in a Linear Paul Trap. *Phys. Rev. Lett.*, **81**:2878–2881, 1992.

[108] Liv Hornekær and M Drewsen. Formation process of large ion Coulomb crystals in linear Paul traps. *Physical Review A*, 66(1):013412, 2002.

[109] J. P. Schiffer, M. Drewsen, J. S. Hangst, and L. Hornekær. Temperature, ordering, and equilibrium with time-dependent confining forces. *Proceedings of*

the National Academy of Sciences of the United States of America, **97**:10697–10700, 2000.

[110] G. Birkl, S. Kassner, and H. Walther. Multiple-shell structures of laser-cooled $^{24}Mg^+$ ions in a quadrupole storage ring. *Nature*, **357**:310–313, 1992.

[111] I. Waki, S. Kassner, G. Birkl, and H. Walther. Observation of ordered structures of laser-cooled ions in a quadrupole storage ring. *Phys. Rev. Lett.*, **68**:2007–2010, 1992.

[112] M Block, A Drakoudis, H Leuthner, P Seibert, G Werth, M Block, A Drakoudis, H Leuthner, and P Seibert. Crystalline ion structures in a Paul trap. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, **33**(11):L375, 2000.

[113] B. Szymanski, R. Dubessy, B. Dubost, S. Guibal, J.-P. Likforman, and L. Guidoni. Large two dimensional Coulomb crystals in a radio frequency surface ion trap. *Applied Physics Letters*, **100**(17):171110, 2012.

[114] T. Rosenband, P. O. Schmidt, D. B. Hume, W. M. Itano, T. M. Fortier, J. E. Stalnaker, K. Kim, S. A. Diddams, J. C. J. Koelemeij, J. C. Bergquist, and D. J. Wineland. Observation of the $^1S_0 \rightarrow^3 P_0$ clock transition in $^{27}Al^+$. *Phys. Rev. Lett.*, 98:220801, May 2007.

[115] R. E. Drullinger, D. J. Wineland, and J. C. Bergquist. High-resolution optical spectra of laser cooled ions. *Applied physics*, **22**(4):365–368, 1980.

[116] Takashi Baba and Izumi Waki. Cooling and Mass-Analysis of Molecules Using Laser-Cooled Atoms. *Japanese Journal of Applied Physics*, **35**(9A):L1134, 1996.

[117] Yoshiki Moriwaki, Maki Tachikawa, Yoshiharu Maeno, and Tadao Shimizu. Collision Cooling of Ions Stored in Quadrupole Radio-Frequency Trap. *Japanese Journal of Applied Physics*, **31**(11B):L1640, 1992.

[118] Stephan Schiller and Claus Lämmerzahl. Molecular dynamics simulation of sympathetic crystallization of molecular ions. *Phys. Rev. A*, **68**:053406, 2003.

[119] Daniel FV James. Quantum dynamics of cold trapped ions with application to quantum computation. *Applied Physics B: Lasers and Optics*, 66(2):181–190, 1998.

[120] Pitt Allmendinger, Johannes Deiglmayr, and Frédéric Merkt. Experimental study of the ion-molecule reaction $H_2^+ + H_2 \rightarrow H_3^+ + H$ at low collision energies. In *Journal of Physics: Conference Series*, volume 635, page 112132. IOP Publishing, 2015.

[121] DJ Berkeland, JD Miller, James C Bergquist, Wayne M Itano, and David J Wineland. Minimization of ion micromotion in a Paul trap. *Journal of applied physics*, 83(10):5025–5033, 1998.

[122] C. B. Zhang, D. Offenberg, B. Roth, M. A. Wilson, and S. Schiller. Molecular-dynamics simulations of cold single-species and multispecies ion ensembles in a linear Paul trap. *Phys. Rev. A*, **76**:012719, 2007.

[123] Marius Romuald Kamsap, Caroline Champenois, J Pedregosa-Gutierrez, Simon Mahler, Marie Houssin, and Martina Knoop. Experimental demonstration of an efficient number diagnostic for long ion chains. *Physical Review A*, 95(1):013413, 2017.

[124] B Roth, JCJ Koelemeij, H Daerr, and S Schiller. Rovibrational spectroscopy of trapped molecular hydrogen ions at millikelvin temperatures. *Physical Review A*, 74(4):040501, 2006.

[125] Jerome Faist, Federico Capasso, Deborah L Sivco, Carlo Sirtori, Albert L Hutchinson, and Alfred Y Cho. Quantum cascade laser. *Science*, 264(5158):553–556, 1994.

[126] B Parvitte, C Thiébeaux, and D Courtois. Tunable heterodyne spectrometer in the 9 μm range with selected lead–salt diodes. *Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy*, 55(10):2027–2037, 1999.

[127] Bérengère Argence, Bruno Chanteau, Olivier Lopez, Daniele Nicolodi, Michel Abgrall, Christian Chardonnet, Christophe Daussy, Benoît Darquié, Yann Le Coq, and Anne Amy-Klein. Quantum cascade laser frequency stabilization at the sub-hz level. *Nature Photonics*, 9(7):456, 2015.

[128] Michael G Hansen, Evangelos Magoulakis, Qun-Feng Chen, Ingo Ernsting, and Stephan Schiller. Quantum cascade laser-based mid-ir frequency metrology system with ultra-narrow linewidth and 1×10^{-13}-level frequency instability. *Optics letters*, 40(10):2289–2292, 2015.

[129] Frank Bielsa, Albane Douillet, Tristan Valenzuela, Jean-Philippe Karr, and Laurent Hilico. Narrow-line phase-locked quantum cascade laser in the 9.2 μm range. *Optics Letters*, **32**(12):1641–1643, 2007.

[130] Franck Bielsa, Khelifa Djerroud, Andrei Goncharov, Albane Douillet, Tristan Valenzuela, Christophe Daussy, Laurent Hilico, and Anne Amy-Klein. HCOOH high-resolution spectroscopy in the 9.18 μm region. *Journal of Molecular Spectroscopy*, 247(1):41–46, 2008.

[131] Christophe Daussy, Olivier Lopez, Anne Amy-Klein, A Goncharov, Mickael Guinet, Christian Chardonnet, François Narbonneau, Michel Lours, Damien Chambon, Sébastien Bize, et al. Long-distance frequency dissemination with a resolution of 10^{-17}. *Physical review letters*, 94(20):203904, 2005.

[132] L Neuhaus, R Metzdorff, S Chua, T Jacqmin, T Briant, A Heidmann, P-F Cohadon, and S Deléglise. Pyrpl (python red pitaya lockbox)-an open-source software package for fpga-controlled quantum optics experiments. In *European Quantum Electronics Conference*, page EA_P_8. Optical Society of America, 2017.

[133] PO Schmidt, T Rosenband, JCJ Koelemeij, DB Hume, Wayne M Itano, James C Bergquist, and David J Wineland. Spectroscopy of atomic and molecular ions using quantum logic. In *AIP Conference Proceedings*, volume 862, pages 305–312. AIP, 2006.

[134] K. Højbjerre, P. Staanum, D. Offenberg, J. L. Sørensen, A. Mortensen, and M. Drewsen. Experiments with single cold molecular ions. In *AIP Conference*

Proceedings, volume 862, pages 299–304, 2006. Non-Neutral Plasma Physics Conference VI.

[135] Fabian Wolf, Piet O Schmidt, Yong Wan, Jan C Heip, Chunyan Shi, and Florian Gebert. Quantum logic with molecular ions. Technical report, 2015.

[136] Fabian Wolf, Yong Wan, Jan C Heip, Florian Gebert, Chunyan Shi, and Piet O Schmidt. Non-destructive state detection for quantum logic spectroscopy of molecular ions. *Nature*, 530(7591):457, 2016.

[137] Chin-wen Chou, Christoph Kurz, David B Hume, Philipp N Plessow, David R Leibrandt, and Dietrich Leibfried. Preparation and coherent manipulation of pure quantum states of a single molecular ion. *Nature*, 545(7653):203, 2017.

Résumé

L'objectif du projet est de réaliser la spectroscopie vibrationnelle à deux photons sans effet Doppler de haute résolution sur l'ion moléculaire H_2^+ afin d'obtenir une mesure optique directe du rapport de la masse du proton à celle de l'électron. Les ions H_2^+ doivent être piégés et refroidis, mais ne peuvent être refroidis que par refroidissement sympathique par l'intermédiaire d'ions Be^+ refroidis par laser. Après une introduction générale, la deuxième partie de ce manuscrit décrit le piégeage d'ions et présente le piège linéaire que nous utilisons afin de piéger les ions H_2^+ et Be^+, ainsi que les méthodes qui permettent de créer les ions Be^+ soit par impact électronique, soit par photo-ionisation d'un jet d'atome de Be. Dans la troisième partie nous présentons la source d'ions H_2^+ sélective en état interne utilisant la photo-ionisation multiphotonique résonante d'H_2 à l'aide d'un laser en impulsion à 303 nm puis nous présentons les ions moléculaires froids sélectionnés en état interne obtenus. Dans la quatrième partie nous présentons le modèle de la spectroscopie par photo-dissociation photonique résonante (REMPD) qui nous permet d'observer la transition dans H_2^+. Dans la cinquième partie nous présentons la conception et la réalisation de la source laser à 313 nm permettant de refroidir les ions Be^+ par refroidissement Doppler. La sixième partie présente l'observation de cristaux de Coulomb de Be^+ ainsi que des cristaux mixtes de Be^+ et H_2^+, elle présente aussi les différentes techniques expérimentales qui nous permettent d'obtenir et d'observer ces cristaux. La septième partie décrit la source laser de spectroscopie à 9.17 μm et la cavité de haute finesse placée sous vide autour des ions.

Mot-clés : Ions piégés, Refroidissement sympathique, Ion moléculaire, Spectroscopie à haute résolution, Cristaux de Coulomb, Ion Be^+, Refroidissement laser, Ionisation multiphotonique, Dissociation photonique.

Abstract

The objective of the project is to perform high-resolution Doppler-free two-photon vibrational spectroscopy on the H_2^+ molecular ions in order to obtain a direct optical measurement of the electron to proton mass ratio. The H_2^+ ions must be trapped and cooled, but can only be cooled by sympathetic cooling using Be^+ laser cooled ions. After a general introduction, the second part of this manuscript describes ion trapping and presents the linear trap we use to trap H_2^+ and Be^+ ions, as well as the methods used to create Be^+ ions either by electronic impact or by photo-ionization of a stream of Be atoms. In the third part we present the state selective H_2^+ ion source using resonance enhanced multiphoton ionisation (REMPI) with a 303 nm pulsed laser, then we present the state-selected cold molecular ions obtained. In the fourth part we present a model for the resonance enhanced multiphoton dissociation spectroscopy technique that we use in order to detect the transition in H_2^+. In the fifth part we present the design and realization of the 313 nm laser source for Doppler cooling of Be^+ ions. The sixth part presents the observation of Coulomb crystals of Be^+ as well as mixed crystals of Be^+ and H_2^+, it also presents the different experimental techniques that allow us to obtain and observe these crystals. The seventh part describes the 9.17 μm spectroscopy laser source and the high finesse cavity placed under vacuum around the ions.

Keywords : Trapped ions, Sympathetic cooling, Molecular Ions, High resolution spectroscopy, Coulomb crystal, Be^+ ion, Laser cooling, REMPI, REMPD.