

SORBONNE UNIVERSITÉ  
LABORATOIRE KASTLER BROSEL  
ÉQUIPE IONS PIÉGÉS



**Rapport de stage,**  
Master2 LUMI

---

Mars - Juillet 2024

**Probing Fundamental Physics  
with  $\text{H}_2^+$**

---

Tuteur de stage: Laurent HILICO

Étudiant : Sahil Viel



# Contents

<b>1</b>	<b>Introduction</b>	<b>3</b>
1.1	Présentation de l'équipe . . . . .	3
1.2	Le rapport de la masse d'un électron et d'un proton . . . . .	3
1.3	Le sujet de stage . . . . .	3
<b>2</b>	<b>L'expérience</b>	<b>3</b>
2.1	Le piège à ions . . . . .	4
2.1.1	Piège de Paul . . . . .	4
2.1.2	Équations de stabilité . . . . .	5
2.1.3	Approximation adiabatique . . . . .	7
2.2	Le refroidissement des ions . . . . .	7
2.2.1	Refroidissement des ions $\text{Be}^+$ . . . . .	8
2.2.2	Refroidissement sympathique de $\text{H}_2^+$ . . . . .	8
2.3	Asservissement d'un laser continu sur un peigne de fréquence . . . . .	9
2.3.1	Le peigne de fréquence . . . . .	10
2.3.2	Sélection des dents . . . . .	13
2.3.3	Asservissement . . . . .	17
2.3.4	Les photodiodes . . . . .	18
2.4	La spectroscopie de $\text{H}_2^+$ . . . . .	20
<b>3</b>	<b>Étude théorique des transitions quadrupolaires électriques</b>	<b>22</b>
3.1	Niveaux d'énergie de l'ion $\text{H}_2^+$ . . . . .	22
3.2	La structure Zeeman et hyperfine de l'ion $\text{H}_2^+$ . . . . .	23
3.2.1	Le théorème de Wigner-Eckart . . . . .	23
3.2.2	Diagonalisation de l'hamiltonien . . . . .	24
3.2.3	Éclatement Zeeman . . . . .	26
3.3	Hamiltonien d'interaction lumière/ion . . . . .	26
3.3.1	Approximation quadrupolaire . . . . .	26
3.3.2	Taux de transitions . . . . .	28
3.4	Spectre (E2) de $\text{H}_2^+$ . . . . .	29
3.4.1	Règles de sélections . . . . .	29
3.4.2	Le spectre attendu . . . . .	29
<b>4</b>	<b>Conclusion</b>	<b>32</b>

<b>A</b>	<b>Annexe: Angles d'Euler et matrices de rotations</b>	<b>35</b>
<b>B</b>	<b>Annexe: Interactions (E2) et (M1)</b>	<b>36</b>

# 1 Introduction

## 1.1 Présentation de l'équipe

J'ai effectué mon stage au sein de l'équipe 'Métrologie des ions piégés' au laboratoire Kastler Brossel, sous la direction de Laurent Hilico. Durant mon stage j'ai également pu interagir avec Maxime Leuliet, un doctorant, et Jean-Philippe Karr, un chercheur. Cette équipe est partagée entre l'étude théorique et expérimentale de l'ion  $H_2^+$ .

## 1.2 Le rapport de la masse d'un électron et d'un proton

La travail expérimental du groupe consiste à mesurer avec une très haute précision des transitions rovibrationnelles de l'ion  $H_2^+$ , avec un objectif de 12 chiffres significatifs. Le but est de pouvoir remonter à des constantes fondamentales tel que  $\mu$  le rapport entre la masse d'un proton et d'un électron. Cette mesure directe de  $\mu$  permettra d'améliorer notre précision sur sa valeur, connue actuellement avec une incertitude relative de  $1.7 \times 10^{-11}$  d'après le [CODATA](#). À terme, une grande précision sur cette mesure sera aussi utile pour la recherche de nouvelle physique au-delà du modèle standard, notamment par la recherche d'éventuelles dérives des constantes fondamentales [1].

## 1.3 Le sujet de stage

Mon activité au sein de cet équipe a été partagée en une partie théorique et une partie expérimentale. Pour la partie expérimentale, j'ai travaillé sur l'asservissement en fréquence d'un laser continu, section 2. Pour l'aspect théorique, j'ai étudié l'interaction des ions  $H_2^+$  avec un laser, et j'ai établi un spectre théorique d'une transition quadrupolaire présenté dans la section 3.

# 2 L'expérience

L'expérience consiste à piéger des ions  $H_2^+$ , de les refroidir puis de faire des mesures de spectroscopie de haute précision. Je détaille d'abord le fonctionnement d'un piège à ion, et la procédure de refroidissement de  $H_2^+$  avant de présenter le travail expérimental que j'ai pu réaliser.

## 2.1 Le piège à ions

### 2.1.1 Piège de Paul

Pour piéger des particules chargées avec un champ électromagnétique, il est nécessaire d'avoir un potentiel qui soit confinant dans les trois directions de l'espace. Une particule placée dans le piège doit subir une force de rappel qui s'oppose à son éloignement du centre du piège. Ici, le potentiel harmonique ressenti par cette particule dans un champ statique sera de la forme [2]:

$$\Phi = \frac{\Phi_0}{2r_0^2}(\alpha x^2 + \beta y^2 + \gamma z^2) + C,$$

où  $r_0$  est une longueur caractéristique du piège et  $C$  une constante. Pour que ce potentiel soit confinant, par exemple dans la direction des  $x$ , il faut que  $\alpha$  soit positif. Le problème est que  $\alpha$ ,  $\beta$  et  $\gamma$  ne peuvent pas être simultanément supérieurs à 0 à cause de la l'équation de Laplace:

$$\Delta\Phi = \frac{\Phi_0}{r_0^2}(\alpha + \beta + \gamma) = 0.$$

Le potentiel est donc forcément déconfinant dans au moins une direction. Pour résoudre ce problème, une solution consiste à appliquer un potentiel dépendant du temps: on fait 'tourner' le piège à des fréquences élevées (radiofréquence, RF). Ce type de piège est appelé piège de Paul ou piège radiofréquence.

**Piège de Paul linéaire:** Il existe plusieurs géométries de pièges RF. Pour le piège linéaire utilisé dans l'expérience (représenté fig. 2.1), la solution consiste à prendre:  $\alpha = 1, \beta = -1, \gamma = 0$ . Le potentiel est alors de la forme:

$$\Phi(x, y, z) = \frac{\Phi_0}{2r_0^2}(x^2 - y^2 + r_0). \quad (2.1)$$

Le potentiel est imposé par quatre électrodes. La dépendance temporelle peut être rajoutée en posant  $\Phi_0 = U_0 + V_0 \cos(\Omega t)$ . On note que ce potentiel ne confine que dans le plan (Oxy). Pour confiner dans la direction  $z$ , on rajoute quatre autres électrodes, appelées 'endcap', qui imposent un potentiel statique de la forme  $\Phi_{endcap} = \frac{U_1}{2z_{eff}}[2z^2 + x^2 - y^2] + C_{endcap}$ .  $C_{endcap}$  est calculé comme étant égal à 0.021 V.

Les électrodes utilisées ici ont la forme de cylindres (fig. 2.1). Les pièges RF nécessitent normalement des électrodes paraboliques. Ici, la taille des électrodes a été choisie pour que les effets d'anharmonicité dûs à leur forme soient minimales. Leur forme se traduit dans les équations par une valeur de  $r_0$  corrigée.

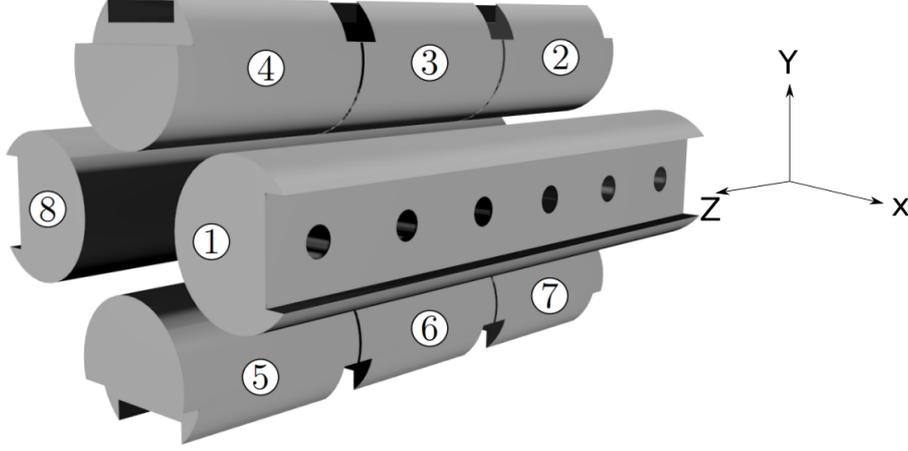


Figure 2.1: Les électrodes 1 et 8 servent à imposer le piège RF, les électrode 3 et 6 sont à la masse et les électrodes 2,4,5 et 7 sont les électrodes 'endcap', d'après [3].

### 2.1.2 Équations de stabilité

#### Confinement dans le plan (Oxy)

La force appliquée à une particule de charge  $q$  dans le potentiel 2.1 est:

$$\mathbf{F} = -q\nabla\Phi = -q\frac{U_0 + V_0 \cos(\Omega t)}{r_0^2} \begin{pmatrix} x \\ -y \\ 0 \end{pmatrix}. \quad (2.2)$$

En appliquant le principe fondamental de la dynamique, on obtient les équations du mouvements dans le plan  $x,y$ :

$$\begin{aligned} \ddot{x} - q\frac{U_0+V_0 \cos(\Omega t)}{mr_0^2}x &= 0, \\ \ddot{y} + q\frac{U_0+V_0 \cos(\Omega t)}{mr_0^2}y &= 0. \end{aligned}$$

Ces équations peuvent être réécrites avec des variables adimensionnées, définies par:

$$\begin{aligned} a_x &= -a_y = \frac{4qU_0}{m\Omega^2 r_0^2}, \\ q_x &= -q_y = \frac{2qV_0}{m\Omega^2 r_0^2}, \\ \tau &= \frac{\Omega t}{2}. \end{aligned}$$

$x$  et  $y$  vérifient alors l'équation d'évolution

$$\ddot{u} + (a_u + 2q_u \cos(2\tau))u = 0.$$

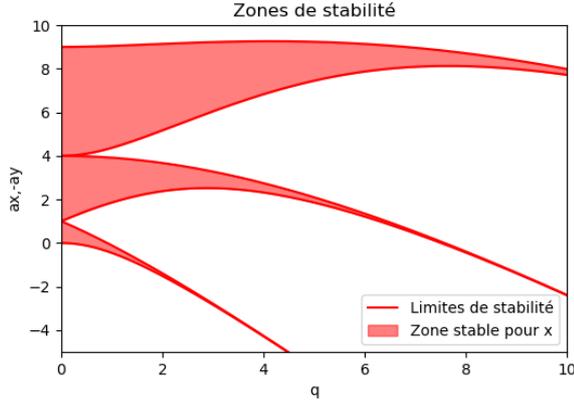


Figure 2.2: Zones de stabilité pour une équation de Mathieu.

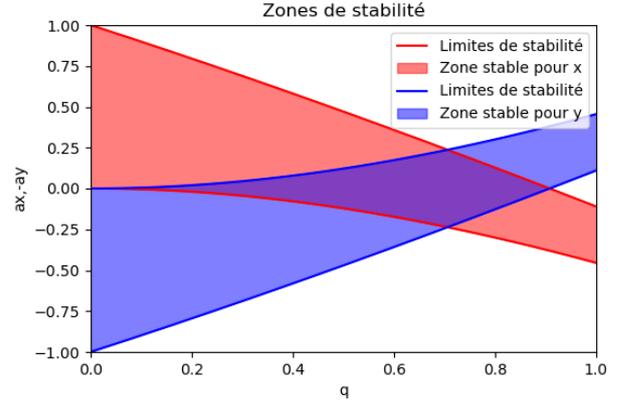


Figure 2.3: Première zone de stabilité pour  $x$  et  $y$ .

Il s'agit d'une équation de Mathieu [3]. Cette équation peut avoir des solutions stables, c'est à dire qu'il existe des couples  $\{a_u, q_u\}$  (ou de manière équivalente  $\{U_0, V_0\}$ ) pour lesquels la position de la particule ne diverge pas pour des temps longs, ou instables.

Les zones de stabilités, montrées fig.2.2 et 2.3, peuvent être retrouvées grâce à la librairie Python 'scipy' qui contient des fonctions pour étudier les équations de Mathieu. Il faut faire attention à choisir un couple de valeurs qui fonctionne à la fois pour la direction  $x$  et pour la direction  $y$  (Fig. 2.3). En effet, à cause de la différence de signe entre  $a_x$  et  $a_y$ , les zones de stabilité sont inversées par rapport à l'axe des abscisses. On se place généralement dans la zone proche de  $(0,0)$ .

### Confinement dans la direction $z$ :

Pour confiner les ions dans la direction  $z$ , on applique un potentiel statique plus faible qui est confinant selon  $z$  et déconfinant dans les autres directions. On a vu qu'il peut s'écrire sous la forme:

$$\Phi_{endcap} = \frac{U_1}{2z_{eff}^2} [2z^2 - x^2 - y^2].$$

En appliquant la seconde loi de Newton, on obtient une équation du mouvement de la forme:

$$\begin{pmatrix} \ddot{x} - \omega_z^2 x/2 \\ \ddot{y} - \omega_z^2 y/2 \\ \ddot{z} + \omega_z^2 z \end{pmatrix} = 0,$$

avec  $\omega_z^2 = 2 \frac{qU_1}{mz_{eff}^2}$ . On reconnaît l'équation d'un oscillateur harmonique dans la direction  $z$ .  $z_{eff}$  est ici une longueur caractéristique, calculée numériquement avec des simulations, et qui vaut 12

mm.

### 2.1.3 Approximation adiabatique

On cherche maintenant à se représenter le mouvement d'un ion piégé. Pour le piège RF, dans le cas  $a \ll 1$  et  $|q|^2 \ll 1$ , on peut établir une formule approchée du mouvement de la particule:

$$x(t) \approx x_0 \cos(\omega_x t) [1 + q_x \cos(\Omega t)/2],$$

$$y(t) \approx y_0 \cos(\omega_y t) [1 + q_y \cos(\Omega t)/2].$$

Dans cette approximation, le mouvement peut se décomposer en deux contributions:

1. **Un mouvement séculaire:** lent de grande amplitude et de fréquence  $\omega_u = \frac{\Omega}{2} \sqrt{\frac{q_u^2}{2} + a_u}$ .
2. **Un micromouvement:** rapide de faible amplitude et de fréquence  $\Omega$ , la fréquence RF.

Dans le cadre de cette approximation, en moyennant le micromouvement, on a comme équations du mouvement:

$$\begin{pmatrix} \ddot{x} + (\tilde{\omega}^2 + \omega_0^2)x \\ \ddot{y} + (\tilde{\omega}^2 - \omega_0^2)y \end{pmatrix} = 0,$$

avec  $\tilde{\omega}^2 = \frac{q^2 V_0^2}{2m^2 \Omega^2 r_0^4}$  et  $\omega_0^2 = \frac{qU_0}{mr_0^2}$ .

En prenant en compte le potentiel appliqué par les électrodes 'endcap', on obtient finalement:

$$\begin{pmatrix} \ddot{x} + (\tilde{\omega}^2 + \omega_0^2 - \omega_z^2/2)x \\ \ddot{y} + (\tilde{\omega}^2 - \omega_0^2 - \omega_z^2/2)y \\ \ddot{z} + \omega_z^2 z \end{pmatrix} = 0.$$

Pour des valeurs de  $\omega_z$  et  $\omega_0$  suffisamment petites devant  $\omega_{x,y}$ , l'ion est piégé dans toutes les directions.

## 2.2 Le refroidissement des ions

Pour atteindre les précisions voulues ( $10^{-12}$  de précision relative), il est nécessaire de refroidir les ions  $\text{H}_2^+$ . En effet, si ils ne sont pas suffisamment froids, l'effet Doppler élargit les raies d'absorption et diminue la précision de la mesure. Parmi les transitions que l'on souhaite étudier, il y a les transitions à deux photons. Pour celles-ci, l'effet Doppler du premier ordre est

annulé. Cependant, l'effet Doppler du second ordre est encore présent et peut limiter la précision de la mesure. Le décalage des fréquences est de l'ordre de:

$$\left| \frac{\Delta\nu}{\nu} \right| = \left| \frac{-v^2}{2c^2} \right| = \frac{mv^2/2}{mc^2} = \frac{\frac{3}{2}k_B T}{mc^2}.$$

Par exemple, pour  $T = 300\text{K}$ ,  $1\text{K}$  et  $10\text{mK}$ , on a  $\frac{\Delta\nu}{\nu} \approx 2 \times 10^{-11}$ ,  $7 \times 10^{-14}$ ,  $7 \times 10^{-16}$  respectivement.

### 2.2.1 Refroidissement des ions $\text{Be}^+$

Une première étape du refroidissement des ions  $\text{H}_2^+$  est le refroidissement d'ions atomiques de  $\text{Be}^+$ , également piégés avec les ions moléculaires. Les ions atomiques peuvent être refroidis avec des techniques bien connues pour produire des atomes froids, en l'occurrence le refroidissement Doppler. Pour utiliser cette technique, on a besoin d'une transition cyclante, c'est-à-dire une transition qui peut être modélisée avec seulement deux niveaux, espacé de  $\hbar\omega_a$ .

Le refroidissement Doppler consiste généralement à éclairer un atome avec deux faisceaux lasers contrapropageants de fréquence  $\omega_L < \omega_a$ . Ces deux faisceaux vont induire une pression de radiation qui va ralentir l'atome dans la direction des deux lasers.

Dans le cas d'ions atomiques piégés, il faut prendre en compte le fait que les ions ne se déplacent pas librement. On peut montrer que dans un potentiel harmonique, il n'y a pas besoin du second laser contrapropageant car la vitesse de l'ion change périodiquement de direction.

Il est utile d'avoir des lasers accordables pour ce type de refroidissement. L'idée est de commencer avec un fort désaccord pour refroidir les ions rapides puis de diminuer progressivement le désaccord pour ralentir les ions lents. Ici, on a besoin d'une accordabilité de 400 MHz.

La transition utilisée est à 313 nm. Pour avoir une source laser accordable à cette longueur d'onde, on utilise d'abord deux lasers fibrés à 1051 nm et 1549 nm. Des processus d'optique non-linéaires servent ensuite à faire la somme de ces fréquences pour obtenir un laser à  $\lambda = 1 / (1/1051 + 1/1049) \approx 626$  nm. La longueur d'onde obtenue est mesurée pour contrôler le résultat. On double ensuite sa fréquence pour finalement avoir un laser à  $\lambda = 626/2 = 313$  nm, voir fig 2.5.

### 2.2.2 Refroidissement sympathique de $\text{H}_2^+$

Pour refroidir les ions  $\text{H}_2^+$ , on ne peut pas utiliser le refroidissement Doppler. En effet, la structure plus complexe des molécules ne permet pas de réutiliser facilement les techniques utilisées pour les atomes froids. Ici, un refroidissement sympathique est mis en place, c'est-à-dire que l'on refroidit les ions  $\text{Be}^+$  directement par laser et que les ions  $\text{H}_2^+$  sont refroidis par interactions coulombiennes avec les ions  $\text{Be}^+$ .

**Cristal de coulomb:** Si on descend suffisamment en température, un nuage d'ions piégés peut passer d'un état désorganisé à un état organisé appelé 'cristal de Coulomb'. Cette transition de phase se produit quand l'énergie d'interaction entre les ions chargés domine leur énergie cinétique. On peut voir un exemple de ce type de cristal dans la fig. 2.4. Sur cette photographie en fausses couleurs, on peut voir en bleu la fluorescence des ions  $\text{Be}^+$ . La ligne noire au centre est un ensemble d'ions  $\text{H}_2^+$ . Ce cristal fait environ 1000 par 100  $\mu\text{m}$  et contient quelques centaines d'ions, refroidis à quelques mK.

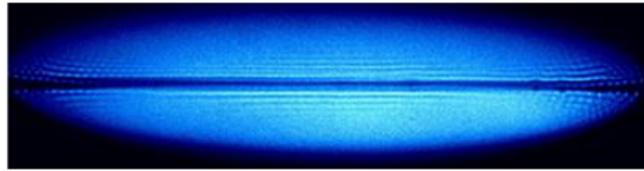


Figure 2.4: Cristal de Coulomb avec des ions  $\text{Be}^+$  et  $\text{H}_2^+$ .

### 2.3 Asservissement d'un laser continu sur un peigne de fréquence

Comme expliqué dans la section 2.2.1, on cherche à avoir un laser à 313 nm avec une accordabilité de 400 MHz. Avant le doublage de fréquence, il faut donc avoir une accordabilité de 200 MHz. Pour réaliser le contrôle en fréquence, on utilise le dispositif présenté sur la fig. 2.5. On asservit deux lasers à fréquence fixe à 1051 nm et 1549 nm sur un peigne de fréquence. Le laser à 1549 nm sert d'intermédiaire entre le peigne et un autre laser à 1549 nm. On réalise ensuite un asservissement accordable entre les deux lasers à 1549 nm. Ce dispositif nous permet d'avoir une source laser accordable à 313 nm.

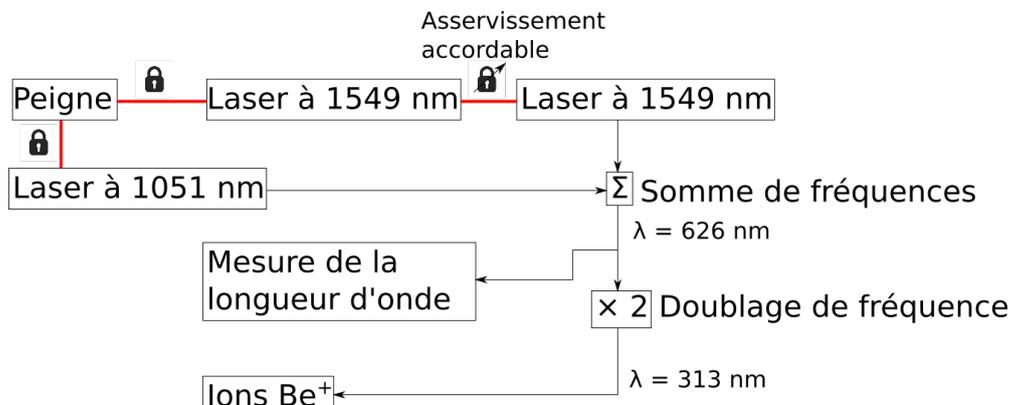


Figure 2.5: Schéma de la procédure pour générer une source accordable 313 nm. En rouge sont les asservissements en fréquence.

Durant mon stage, j'ai travaillé sur la stabilisation du laser à 1051 nm sur le peigne. Je résume son implémentation dans les sous-sections qui suivent. Un schéma simplifié du montage est présenté fig. 2.6. Les sous-sections détaillent dans l'ordre: le fonctionnement d'un peigne de fréquence et son utilisation pour la métrologie des fréquences optiques, le montage pour sélectionner les dents du peigne, le dispositif pour asservir le laser à 1051nm et enfin la caractérisation des photodiodes utilisées.

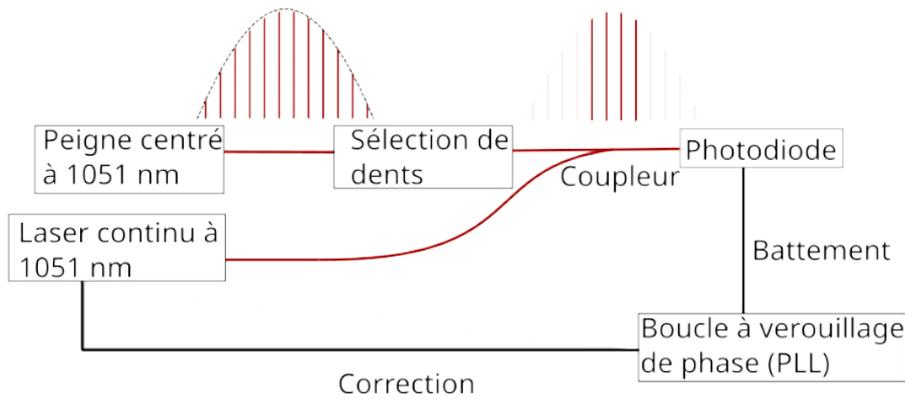


Figure 2.6: Schéma simple de la procédure d'asservissement du laser.

### 2.3.1 Le peigne de fréquence

#### Principe d'un peigne de fréquence

Un peigne de fréquence est un laser qui produit des impulsions femtosecondes. Dans l'espace des fréquences, ces impulsions correspondent à des dents très fines et régulièrement espacées (voir fig. 2.7) [4]. La fréquence de la  $n$ -ième dent est donnée par  $\nu_n = f_0 + n f_{rep}$  où  $f_0$  est un décalage en fréquence et  $f_{rep}$  est le taux de répétition. Le taux de répétition est relié à la durée d'un aller-retour de la lumière dans la cavité du laser,  $T_{rep,\zeta}$  par  $f_{rep} = 1/T_{rep}$ . Par ailleurs,  $T_{rep}$  est aussi la durée entre deux impulsions.

Le peigne de fréquence utilisé ici est un laser de la marque Toptica. Le milieu à gain de ce laser est une fibre dopée à l'erbium, pompée par une diode laser. L'enveloppe des dents du peigne produit est centrée à 1565 nm et a une largeur à mi-hauteur de 22 nm. Des extensions de ce laser servent à générer d'autres peignes centrés à 1895 nm et 1051 nm. Ces extensions consistent en des fibres hautement non linéaires qui vont décaler le peigne.

#### Asservissement du taux de répétition

Le peigne de fréquence sert ici de référence, il est donc nécessaire qu'il soit stabilisé en fréquence. Sur le peigne utilisé, le décalage  $f_0$  est supprimé par construction par des effets non linéaires. La

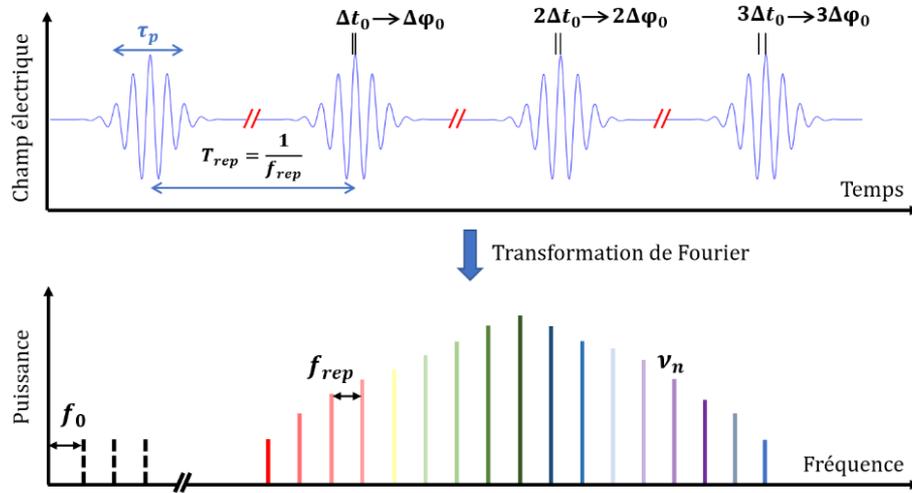


Figure 2.7: Schéma d'un peigne de fréquence dans le domaine temporel (haut) et dans le domaine fréquentiel (bas), d'après [4].

fréquence d'une dent est donc donnée par  $\nu_n = n.f_{rep}$ . Il ne reste donc plus qu'à contrôler le taux de répétition pour que toutes les dents soient à une fréquence bien connue.

Pour asservir le  $f_{rep}$ , il y a trois leviers sur lesquels on peut agir:

1. **La température de l'oscillateur** permet de contrôler  $f_{rep}$  sur  $\pm 10$  kHz, mais lentement. La bande passante de ce contrôle est de 1 Hz.
2. **La céramique piézoélectrique** qui fait varier la taille de la cavité. Elle permet de faire varier  $f_{rep}$  sur  $\pm 200$  Hz, avec une bande passante de 70 kHz.
3. **Le courant de pompe** injecté dans l'oscillateur peut faire varier  $f_{rep}$  sur 100 Hz, avec une bande passante de 10MHz.

Le taux de répétition est ici de 200 MHz. Pour l'asservir, il y a deux types de références que l'on peut utiliser: une référence optique ou RF. L'asservissement sur la référence optique est celui qui permet le contrôle le plus rapide et est celui utilisé durant les mesures. La référence provient du LNE-SYRTE, qui produit un signal ultrastable à  $\nu_{ref} = 194\,400\,008\,500\,000 \pm 2$  Hz. Cette référence est ensuite distribuée dans différents laboratoires, dont le LKB, via le réseau fibré [REFIMEVE](#).

On réalise le battement entre le peigne et la référence avec une photodiode. La fréquence du signal obtenu est comparée à celle d'un synthétiseur, lui-même référencé aux horloges du Syrte. Le signal du synthétiseur est fixé à 8.5 MHz et la fréquence du battement est  $\nu_{ref} - n.f_{rep}$ . Pour  $n = 972\,000$ , le taux de répétition est fixé à 200 MHz. La comparaison de phase du battement avec le synthétiseur se fait avec un comparateur phase/fréquence qui va générer un signal d'erreur. Enfin,

un module Proportionnel/Intégrateur va transformer le signal d'erreur en signaux de corrections qui vont jouer sur les trois leviers de contrôle. Avec ce montage (fig. 2.8), le peigne peut rester stable plusieurs semaines.

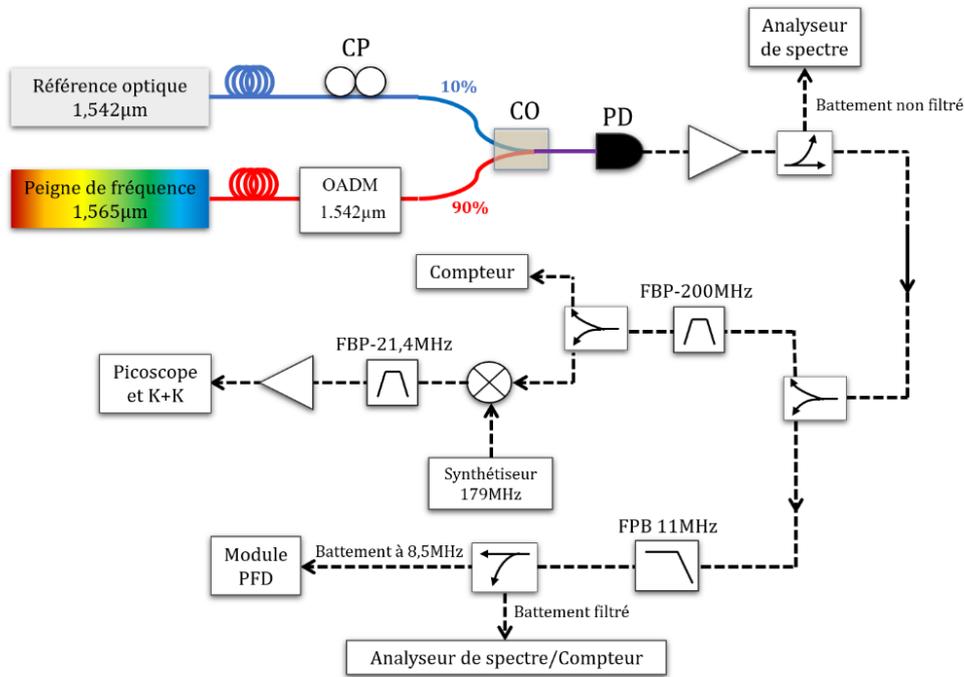


Figure 2.8: Schéma complet de la production du signal d'erreur dans le cas d'un asservissement du peigne avec REFIMEVE. CP: contrôleur de polarisation, CO: coupleur de fibres, PD: photodiode, FBP: filtre passe bande, FPB: filtre passe-bas, Module PFD: comparateur phase/fréquence. D'après [4].

### Battement entre un laser continu et le peigne de fréquence:

On va par la suite réaliser un battement entre le peigne de fréquence et un laser continu. Dans cette partie, on décrit ce qui est attendu.

Tout d'abord, si on mesure l'intensité du laser femtoseconde seul avec une photodiode et que l'on fait une analyse spectrale du signal mesuré, on obtient une série de pics régulièrement espacés de  $f_{rep}$ . Cela correspond aux différentes dents du peigne qui interfèrent entre elles. Les dents voisines ( $n$  et  $n+1$ ) interfèrent deux à deux et produisent le signal à  $f_{rep}$ . Le battement des dents  $n$  et  $n+2$  donne le signal à  $2f_{rep}$  et ainsi de suite. Comme il y a plusieurs milliers de dents, ces pics sont très intenses.

Si on fait maintenant le battement du laser continu avec le peigne, on retrouve les mêmes pics espacés de  $f_{rep}$  auxquels s'ajoutent des pics, eux aussi espacés de  $f_{rep}$ , qui correspondent aux battements entre le laser et les diverses dents du peignes. La fréquence de ces pics sera de  $|\nu_{Laser} - n f_{rep}|$ . Comme toutes les dents sont à des fréquences bien définies, un de ces battements

peut servir de signal pour asservir un laser continu. On note cependant que si on veut balayer en fréquence ce laser continu, on ne peut pas le faire sur plus de  $f_{rep}/2$  car sinon, le battement avec les autres dents du peigne vient perturber l'asservissement, voir fig. 2.9.

Le peigne est donc utilisé pour asservir à fréquence fixe un laser à 1051 nm et un laser à 1549 nm. On asservit ensuite un autre laser à 1549 sur le premier avec une fréquence de battement accordable. Cette fois-ci, il n'y a que deux lasers, on n'est donc pas limité par les dents du peigne pour le balayage. La limite de l'accordabilité est la bande passante de la photodiode qui mesure le battement, qui est ici plus grande que 1 GHz, soit bien plus grande que les 200 MHz nécessaires.

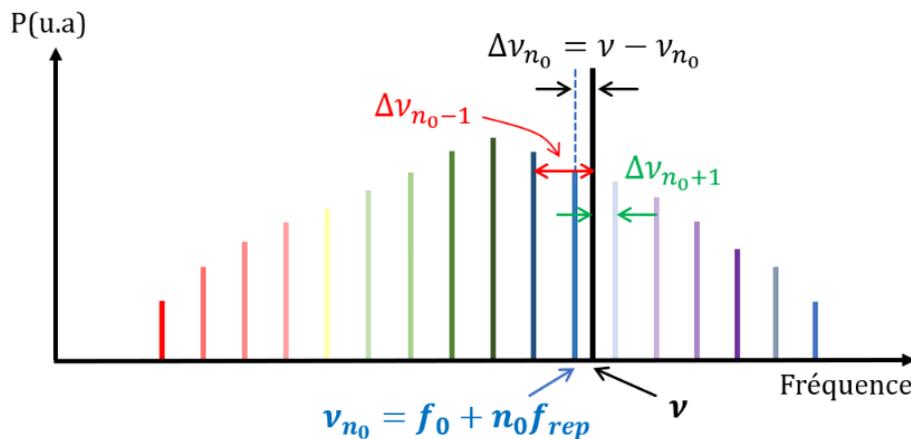


Figure 2.9: Schéma des écarts de fréquence entre un laser continu et un peigne.

### 2.3.2 Sélection des dents

Pour l'asservissement du laser à 1051 nm, j'ai réalisé le battement d'un laser continu et d'une extension du peigne à 1051 nm. Le laser femtoseconde étant puissant, il est nécessaire de sélectionner uniquement les dents proches de 1051 nm pour ne pas saturer la photodiode. Pour ce faire, on utilise le montage illustré sur le schéma de la fig. 2.10.

Le peigne à 1051 nm sort de la fibre, puis est diffracté par un réseau optique. Les différentes dents vont être déviées d'un angle différent en fonction de leur fréquence, ce qui nous permet de les séparer. Une petite partie d'entre elles sont réfléchies sur le miroir et une plus petite partie encore est injectée dans la seconde fibre. Celle-ci est couplée à une autre fibre qui transporte le laser continu et le battement est mesuré par une photodiode (fig. 2.6).

Une difficulté de ce montage est qu'il faut suffisamment de distance entre le réseau et le collimateur, pour que les dents se séparent.

#### **Diffraction par un réseau:**

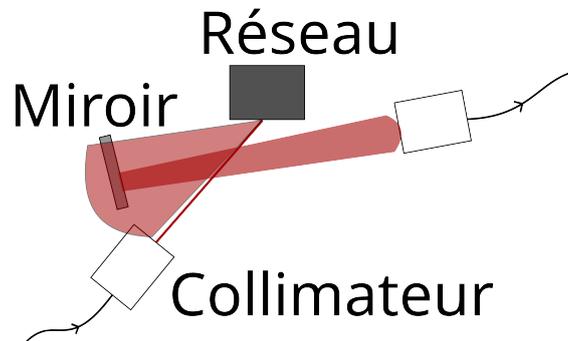


Figure 2.10: Schéma du montage pour sélectionner une dent, d'après [4].

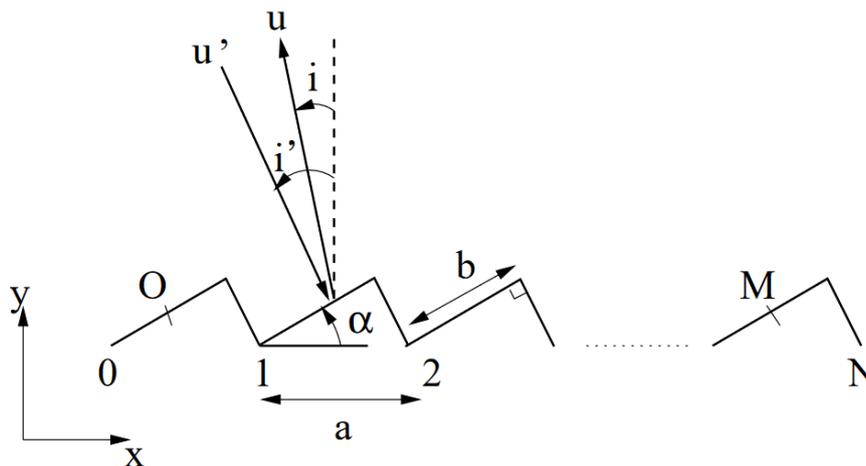


Figure 2.11: Schéma du réseau à échelettes, d'après [5].

D'une manière générale, un réseau de diffraction est un ensemble de petits éléments réfléchissant régulièrement espacés de  $a$ . On peut résumer son action par la formule des réseaux par réflexion:

$$\sin(i) + \sin(i') = p \frac{\lambda}{a},$$

où  $i'$  est l'angle d'incidence,  $i$  est l'angle diffracté et  $p$  est l'ordre de diffraction.

Le réseau utilisé ici est un réseau à échelettes. Il s'agit d'un réseau dans lequel des petits miroirs sont régulièrement espacés de  $a$  et inclinés d'un angle  $\alpha$  (ici  $\alpha \approx 39^\circ$ ), voir fig.2.11.

On calcule la fonction de diffraction de ce réseau en fonction des angles  $i$  et  $i'$ . La position du

point courant M est:  $\mathbf{OM} = \begin{pmatrix} na + l \cos \alpha \\ l \sin \alpha \end{pmatrix}$ , où  $l$  est la position de M sur le  $n$ -ième miroir avec  $l = -b/2$  le point M en bas du  $n$ -ième miroir et  $l = b/2$ , le point M en haut. Les vecteurs unitaires des rayons incident et diffracté sont:

$$\mathbf{u}' = \begin{pmatrix} \sin i' \\ -\cos i' \end{pmatrix}; \mathbf{u} = \begin{pmatrix} -\sin i \\ \cos i \end{pmatrix}.$$

On peut écrire  $\delta$ , la différence de marche entre le rayon au point M et celui au point O comme:

$$\begin{aligned} \delta &= \mathbf{OM} \cdot (\mathbf{u}' - \mathbf{u}) \\ &= l[\cos \alpha(\sin i' + \sin i) - \sin \alpha(\cos i' + \cos i)] + na(\sin i' + \sin i) \\ &= l\gamma/k + n\sigma/k, \end{aligned} \quad (2.3)$$

avec  $k = 2\pi/\lambda$ ,  $\gamma = [\cos \alpha(\sin i' + \sin i) - \sin \alpha(\cos i' + \cos i)]$  et  $\sigma = a(\sin i' + \sin i)$ .

Le champ total diffracté est donné par:

$$\begin{aligned} E_{tot} &= \sum_{n=1}^N \int_{-b/2}^{b/2} E_0 \exp\{i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})\} dl \\ &= E_0 \exp\{i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{OO})\} \sum_{n=1}^N \int_{-b/2}^{b/2} \exp\{ik\delta\} dl \\ &= E_0 \exp\{i(\omega t)\} \sum_{n=1}^N \exp\{in\sigma\} \int_{-b/2}^{b/2} \exp\{il\gamma\} dl \\ &= -bE_0 \exp\{i(\omega t)\} \operatorname{sinc}(\gamma b/2) \frac{\exp\{ikN\sigma/2\} \sin(kN\sigma/2)}{\exp\{ik\sigma/2\} \sin(k\sigma/2)}. \end{aligned} \quad (2.4)$$

Donc lorsque l'on calcule l'intensité, on obtient:

$$I = I_0 b^2 \operatorname{sinc}^2(\gamma b/2) \left( \frac{\sin(kN\sigma/2)}{\sin(k\sigma/2)} \right)^2.$$

Le terme en sinus cardinal est le facteur de forme du réseau et le rapport des deux sinus est la fonction de diffraction d'un réseau, qui donne les différents ordres.

On connaît les expressions de  $\gamma$  et  $\sigma$  on peut donc tracer  $I$  en fonction de  $i'$  ou de  $i$ . Pour un angle d'incidence  $i'$  donné, le graphe 2.12 montre l'intensité mesurée en fonction de l'angle  $i$ .

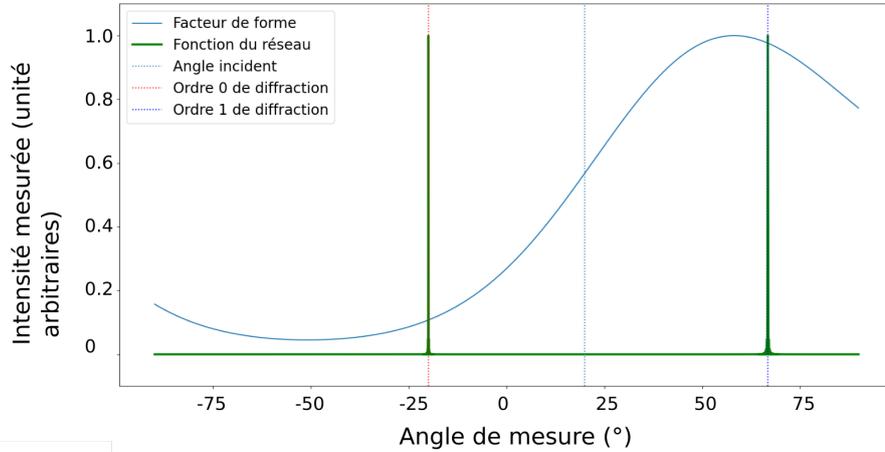


Figure 2.12: Graphe de la fonction de réseau et du facteur de forme théoriques.

On peut y voir en vert la fonction du réseau et en bleu le facteur de forme, pour  $i' = 20^\circ$ . Par ailleurs, le maximum du facteur de forme est à  $58^\circ$ . Si on remplace le réseau par un seul miroir, cet angle correspond à l'angle de réflexion d'un rayon lumineux d'incidence  $i'$ . L'intensité diffractée est simplement le produit des deux termes.

Pour trouver un optimum de puissance diffractée, on trace le graphe de l'intensité en fonction de  $i'$  en fixant  $i$  à l'angle du premier ordre. Il faut aussi prendre en compte le fait que pour  $i' > \alpha$ , les échelettes portent une ombre sur leur voisine. Cela revient à intégrer non plus entre  $-b/2$  et  $b/2$  mais entre  $\text{Max}[-b/2, -b/2 + \sin(\alpha) \tan(i' - \alpha)]$  et  $b/2$ . On obtient le graphe 2.13.

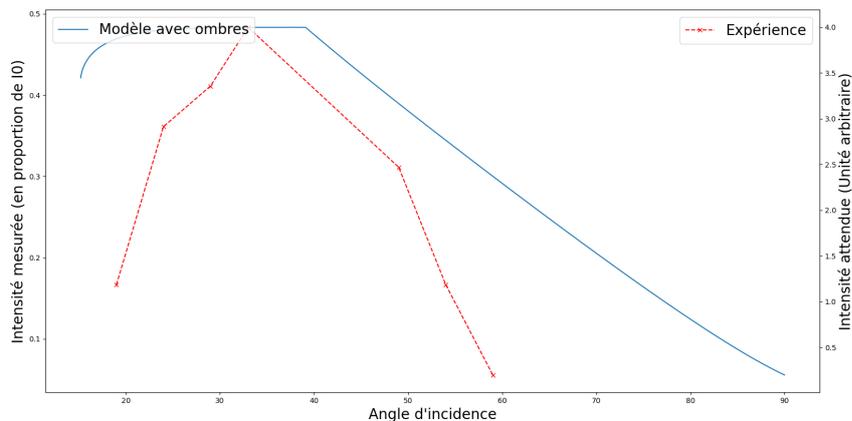


Figure 2.13: Comparaison entre quelques points de mesures et le modèle du réseau optique.

On voit que si on veut maximiser la puissance diffractée, il faut se placer avec un angle  $i' =$



Figure 2.14: Photographie du montage de sélection des dents.

$\alpha$  ou un peu moins. En prenant ce fait en compte mais aussi que l'espacement angulaire entre les dents est plus grand pour les grands  $i'$  et qu'il faut environ 20 cm entre le réseau et la seconde fibre, j'ai essayé d'optimiser et de compacter au maximum le montage. Le résultat est montré sur la fig. 2.14.

### 2.3.3 Asservissement

L'asservissement est réalisé avec le montage présenté figure 2.15. Comme expliqué plus haut, on mesure le battement entre un petit nombre de dents et le laser continu à 1051 nm. On met ensuite un jeu d'amplificateurs et d'atténuateurs pour optimiser le signal RF. Le but est d'atteindre un signal à 0 dBm et avec un rapport signal/bruit suffisant, d'au moins de 30 dB dans 100 kHz de bande passante d'analyse. Ce signal est filtré puis sa fréquence est divisée par 8 et comparée à celle d'un synthétiseur.

Si la fréquence du signal est plus élevée que celle de la référence, le comparateur donne en sortie un signal en dent de scie avec une pente positive et des tensions supérieures à 0V, comme sur la fig. 2.16. À l'inverse, pour une fréquence du signal plus faible que la référence, on obtient un signal en dent de scie avec une pente négative et des tensions inférieures à 0V (fig. 2.17). Ces pentes sont proportionnelles à l'écart en fréquence.

La sortie du comparateur phase/fréquence est le signal d'erreur. Il est ensuite converti en un signal de correction pour le laser continu par un module proportionnel/intégrateur.

Finalement, le battement obtenu avec le laser asservi est montré sur la figure 2.18. Le pic central est très fin et il y a un rapport signal/bruit de 30 dBm environ. La boucle de rétroaction est suffisamment robuste pour garder le laser à une fréquence fixe pendant plusieurs heures sans

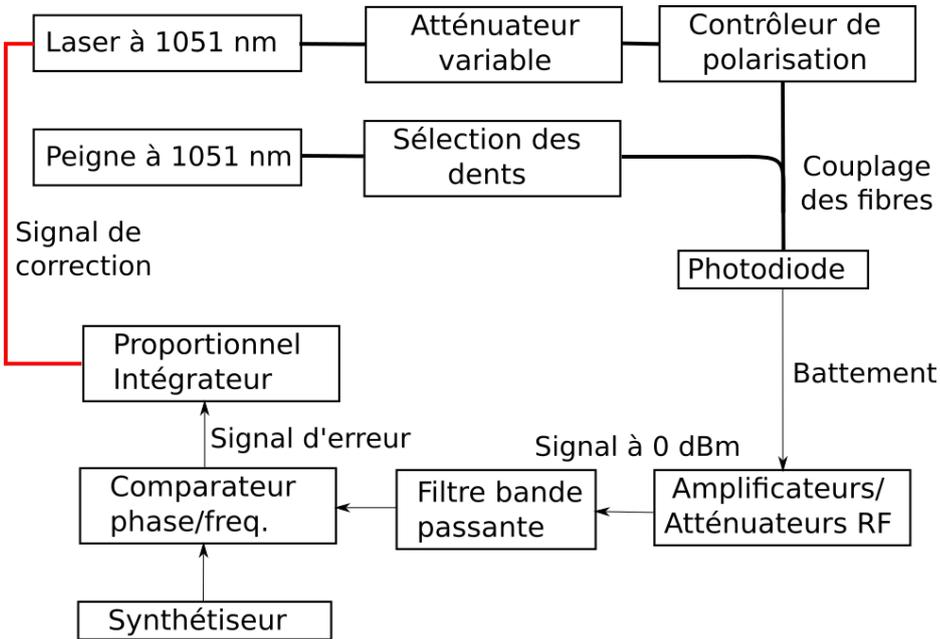


Figure 2.15: Schéma de l'asservissement du laser.

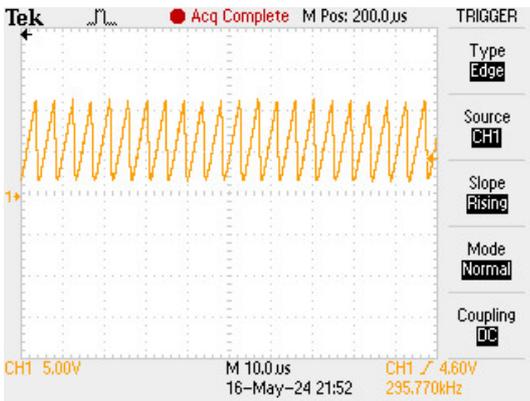


Figure 2.16: Sortie du comparateur phase/fréquence quand la fréquence du signal est plus élevée que celle de la référence.

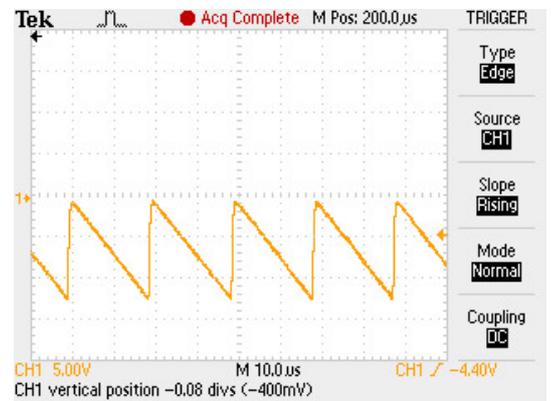


Figure 2.17: Même chose mais avec une fréquence plus basse.

soucis.

### 2.3.4 Les photodiodes

J'ai caractérisé la puissance du bruit de deux photodiodes identiques utilisées en fonction de la puissance incidente. Un montage simplifié du circuit dans le quel elles sont montées est présenté fig. 2.19. La photodiode délivre un courant  $i_{ph}$  proportionnel à la puissance lumineuse reçue.

Les bruits attendus ici sont:

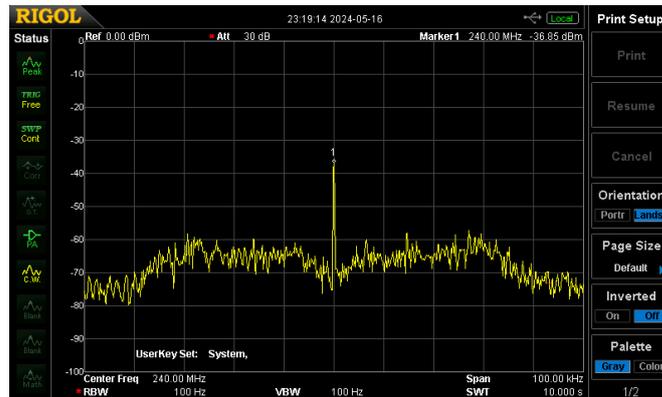


Figure 2.18: Analyse spectrale du laser asservi.

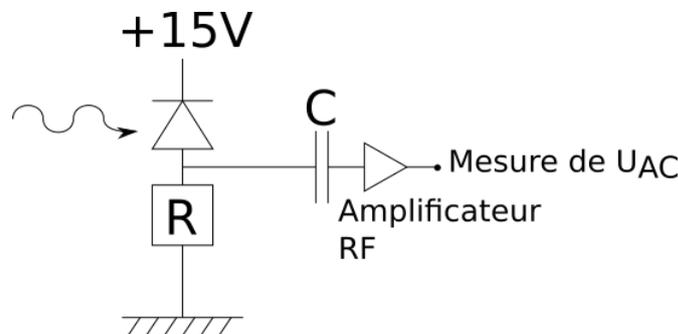


Figure 2.19: Schéma simplifié de la sortie AC de la photodiode, avec  $R = 1000 \Omega$ .

1. **Le bruit thermique** (bruit de Johnson) de densité spectrale de puissance (DSP):  $S_{th} = GFk_bT/R_{eq}$  en  $A^2/Hz$ , avec  $G$  est un gain provenant d'un amplificateur RF et  $F$  le facteur de bruit de l'amplificateur.
2. **Le bruit de grenaille** de DSP:  $S_{shot} = 2ei_{ph}$  en  $A^2/Hz$ .
3. **La puissance équivalente de bruit de la photodiode** (NEP, noise equivalent power) mais qui est négligable devant les deux autres.

$R_{eq}$  est la résistance équivalente du circuit. Dans le circuit on a  $1000 \Omega$  mis en parallèle avec une résistance inconnue car on n'a pas accès aux plans détaillés des composants électroniques.  $F$  est le rapport entre les rapports signal sur bruit à l'entrée et à la sortie de l'amplificateur et est estimé ici à 1,8 par le constructeur.

Les bruits étant indépendants, on peut additionner les DSP. On obtient:

$$P_{bruit} = GB(Fk_bT + 2ei_{ph}R_{eq})$$

en Watt, avec  $B$ , la bande passante de l'analyseur de spectre utilisée pour la mesure. La photodiode

fournit un courant  $i_{ph} = \eta P_l$  avec  $\eta$  l'efficacité quantique et  $P_l$  la puissance lumineuse incidente. La puissance de bruit est donc supposée être une fonction affine de la puissance lumineuse.

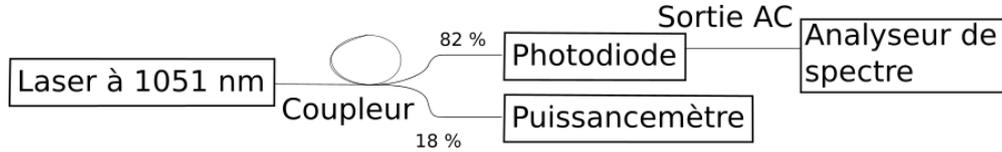


Figure 2.20: Montage pour la mesure du bruit de la photodiode.

La mesure, a été réalisée avec le montage de la figure 2.20. Pour mesurer le bruit de la photodiode, on utilise l'analyseur de spectre avec une bande passante de 100 kHz. La figure 2.21 montre la puissance de bruit des deux photodiodes.

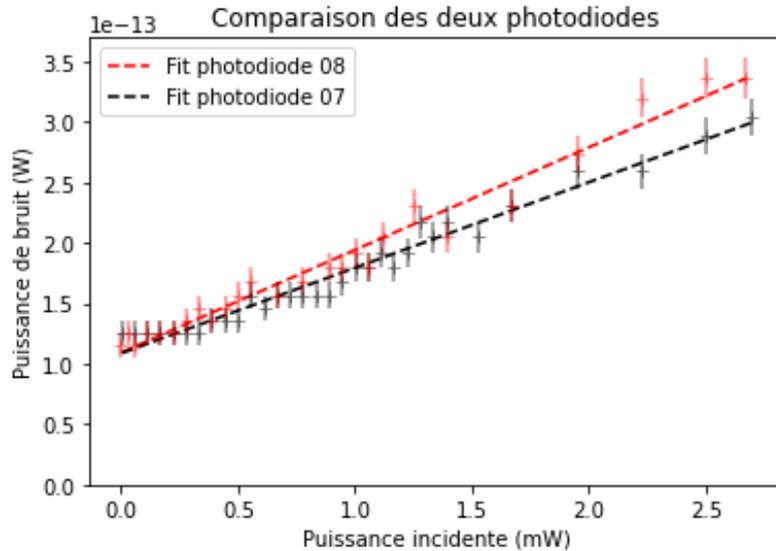


Figure 2.21: Puissance du bruit électronique en sortie des photodiodes en fonction de la puissance optique incidente.

La pente et l'ordonnée à l'origine nous donne une résistance équivalente de  $15 \pm 0.7 \Omega$  ou  $17 \pm 0.5 \Omega$  et un gain de  $146 \pm 4$  et  $147 \pm 3.5$  pour chaque photodiode.

Le bruit dominant qui limite nos photodiodes ici est le bruit de grenaille.

## 2.4 La spectroscopie de $H_2^+$

Pour réaliser la spectroscopie de  $H_2^+$ , on cherche à éclairer les ions piégés avec un laser et pour chaque fréquence émise par le laser, on souhaite connaître la proportion d'ions qui ont absorbé de la lumière. En pratique, cette expérience est difficile à réaliser car les niveaux rovibrationnels de  $H_2^+$  sont métastables [2]. On ne peut donc pas détecter les ions excités grâce à leur fluorescence.

La méthode utilisée ici est la 'Resonance Enhanced Multi-Photon Dissociation spectroscopy' (REMPD). Elle consiste à photo-dissocier les ions  $H_2^+$  avec un laser UV à 213 nm. Cette dissociation des ions est beaucoup plus probable pour les ions de l'état excité de la transition étudiée. Le nombre d'ions moléculaires restant dans le piège est donc le signal de spectroscopie utilisé. Pour compter les ions restants, on utilise les propriétés du piège. On a vu dans la partie 2.1.3 que dans l'approximation adiabatique les ions ont un mouvement périodique dont la pulsation dépend de la masse des particules. On peut exciter les mouvements séculaires en rajoutant une tension de pulsation  $\omega$  avec les électrodes. Cela va induire un déplacement des ions  $Be^+$  soit en rentrant en résonance avec leurs modes de déplacement ( $\omega = \omega_{x,y,z}(m_{Be^+})$ ), soit en rentrant en résonance avec les modes de déplacement d'autres ions (par exemple  $\omega = \omega_{x,y,z}(m_{H_2^+})$ ) qui vont faire bouger les ions  $Be^+$  par interaction de Coulomb. Le mouvement des ions  $Be^+$  induit une variation de leur fluorescence qui est mesurée avec un photo-multiplicateur. Cette méthode permet de déterminer la masse des ions piégés qui ne fluorescent pas. Elle permet aussi d'avoir une indication sur leur nombre, en faisant l'hypothèse que l'amplitude des variations de la fluorescence dépend du nombre d'ions excités. On peut ainsi trouver pour quelle fréquence du laser l'absorption est la plus forte.

### 3 Étude théorique des transitions quadrupolaires électriques

Cette partie présente l'étude des transitions quadrupolaires électriques (E2) dans l'ion  $\text{H}_2^+$ . Le but est d'établir un spectre théorique de la transition rovibrationnelle ( $v = 0, L = 2$ )  $\rightarrow$  ( $v' = 3, L = 2$ ), dans l'état électronique fondamental. Cette transition pourra être sondée grâce à un laser continu à 1621 nm.

Afin d'établir le spectre, il faut d'abord connaître les niveaux d'énergie en jeu. C'est l'objet des parties 3.1 et 3.2. On établit ensuite les équations qui gouvernent l'interaction quadrupolaire électrique, section 3.3, avant de résumer les règles de sélections attendues et le spectre obtenu, section 3.4.

#### 3.1 Niveaux d'énergie de l'ion $\text{H}_2^+$

##### Une molécule homonucléaire

L'ion  $\text{H}_2^+$  est homonucléaire, ce qui induit des subtilités dans les transitions autorisées et les nombres quantiques à utiliser. Les notations suivantes se basent sur celles de l'article [6]. Le spin de l'électron est noté  $S_e = 1/2$  et les spins des deux protons 1 et 2 sont notés  $I_{1,2} = 1/2$ . Le spin nucléaire total est  $I = I_1 + I_2 = 0$  ou 1. Par ailleurs on note  $L$  le moment cinétique total.

L'hamiltonien de la molécule est invariant par symétrie d'inversion,  $\hat{\Pi}$ . On donne que, dans les états considérés ici, la valeur propre de cet opérateur est  $\Pi = (-1)^L$  [7]. Par ailleurs, on a  $\Pi = \Pi_e P_{1,2}$ , avec  $\Pi_e$ , la parité de la fonction d'onde électronique et  $P_{1,2}$ , la symétrie d'échange des protons. On étudie des transitions rovibrationnelles, c'est-à-dire qu'il n'y a pas de transitions électronique. Ici, on se place toujours dans l'état électronique  $1s\sigma_g$ , donc  $\Pi_e = 1$ . Finalement, on obtient  $\Pi = P_{1,2} = (-1)^L$ . On en déduit que pour  $L$  pair, on a une symétrie d'échange des noyaux, c'est-à-dire que les projections  $I_{z1}$  et  $I_{z2}$  sont dans le même sens, ce qui implique que  $I = 1$ . À l'inverse, pour  $L$  impair, on a une antisymétrie d'échange des noyaux, donc  $I_{z1} = -I_{z2}$ , soit  $I = 0$ .

Ce lien entre  $I$  et  $L$  explique pourquoi il n'y a pas de transition dipolaire électrique (E1) à 1 photon possible. Ces transitions couplent des états de symétries différentes mais ici, cela impliquerait d'agir sur le spin nucléaire, ce qui n'est pas le cas. Les transitions à deux photons sont autorisées, ainsi que les transitions quadrupolaires.

##### Les nombres quantiques utilisés

On résume les bons nombres quantiques et leurs valeurs possibles dans la transition étudiée:

1.  $\mathbf{I}$ , le spin nucléaire total et  $S_e$  le spin électronique, ici  $S_e = 1/2$  et  $I = 0$ .
2.  $\mathbf{F} = \mathbf{I} + \mathbf{S}_e$ , le spin total. Ici,  $F = 1/2$ .
3.  $\mathbf{J} = \mathbf{F} + \mathbf{L}$ , le moment angulaire total. Ici,  $L = 2$  donc  $J = 3/2$  ou  $5/2$ .

## Hamiltonien sans spin et sans corrections

Dans le centre de masse, l'hamiltonien non relativiste,  $H^{NR}$ , qui ne tient pas en compte du spin des particules, et sans interaction avec un champ électrique, est donné par:

$$H^{NR} = \frac{P_1^2}{2m_p} + \frac{P_2^2}{2m_p} + \frac{P_e^2}{2m_e} + \frac{q_e^2}{4\pi\epsilon_0} \left( -\frac{1}{\mathbf{r}_e - \mathbf{r}_1} - \frac{1}{\mathbf{r}_e - \mathbf{r}_2} + \frac{1}{\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2} \right),$$

avec 1 et 2 en indice qui font référence aux protons, l'indice e qui désigne l'électron et  $q_e$  la charge fondamentale. À cet hamiltonien, on va rajouter des corrections qui proviennent de la structure hyperfine de l'ion, de la levée de dégénérescence due à l'effet Zeeman et l'interaction avec une onde lumineuse.

## 3.2 La structure Zeeman et hyperfine de l'ion $\text{H}_2^+$

### 3.2.1 Le théorème de Wigner-Eckart

Le théorème de Wigner-Eckart sera beaucoup utilisé dans ces calculs, c'est pourquoi il est d'abord présenté de manière générale. On se place dans une base:  $\{ |\tau J J_z\rangle \}$  où  $J$  est la valeur propre d'un opérateur  $\widehat{J}^2$  et  $J_z$  la valeur propre de la propre de l'opérateur  $\widehat{J}_z$ . Soit  $T^{(k)}$  un opérateur tensoriel. Cet opérateur est dit irréductible si on peut regrouper ses composantes en  $q$  composantes, avec  $q$  allant de  $-k$  à  $+k$  par pas de 1. On note alors ces composantes, dites 'standards',  $T_q^{(k)}$ . Le théorème de Wigner-Eckart donne cette relation pour un élément de matrice [8] :

$$\langle \tau J J_z | T_q^{(k)} | \tau' J' J'_z \rangle = \frac{1}{\sqrt{2J+1}} \langle J' k; J_z q | J J_z \rangle \langle \tau J | T^{(k)} | \tau' J' \rangle,$$

avec  $\langle J' k; J_z q | J J_z \rangle$  un coefficient de Clebsch-Gordan et  $\langle \tau J | T^{(k)} | \tau' J' \rangle$  une constante que l'on nomme l'élément de matrice réduit. On note que cet élément de matrice réduit ne dépend pas de  $J_z$  ou  $J'_z$ .

Lorsque l'on calcule des transitions ou des corrections en énergies en théorie des perturbations, la dégénérescence en  $2J+1$  de  $J_z$  peut rendre le nombre de calculs à effectuer très grand. Ce théorème permet d'éviter à avoir à calculer tous les éléments de matrice, puisque les coefficients de Clebsch-Gordan sont connus.

Par ailleurs, dans l'appendice C de [8], il se trouve des formules utiles pour calculer ces éléments de matrices réduits. Les formules utilisées sont résumées ici:

1.

$$\langle \tau J | |J| | \tau' J' \rangle = \delta_{\tau, \tau'} \delta_{J, J'} \sqrt{J(J+1)(2J+1)}. \quad (3.1)$$

2. Dans le cas où notre système est composé de deux sous-systèmes (1) et (2), la composition

du moment cinétique donne:  $\mathbf{J} = \mathbf{J}_1 + \mathbf{J}_2$ . Si le tenseur  $T^{(k)}$  agit uniquement sur (1), on peut écrire:

$$\begin{aligned} & \langle \tau_1 \tau_2 J_1 J_2 J | T^{(k)} | \tau'_1 \tau'_2 J'_1 J'_2 J' \rangle \\ &= \delta_{\tau_2, \tau'_2} \delta_{J_2, J'_2} \langle \tau_1 J_1 | T^{(k)} | \tau'_1 J'_1 \rangle (-1)^{J'+J_1+J_2+k} \sqrt{(2J+1)(2J'+1)} \begin{Bmatrix} J_1 & k & J'_1 \\ J' & J_2 & J \end{Bmatrix}, \end{aligned} \quad (3.2)$$

avec les six nombres entre accolades, un symbole de Wigner 6j.

### 3.2.2 Diagonalisation de l'hamiltonien

L'hamiltonien que l'on cherche à diagonaliser est la somme de l'hamiltonien de structure hyperfine et de l'hamiltonien Zeeman. Dans le cas  $I = 0$ , on peut le résumer en quatre termes [9]:

$$H = H_{hfs} + \mu_b g_e \mathbf{S}_e \cdot \mathbf{B} + \mu_b \mathbf{L} \cdot \mathbf{B} - \mu_p (\mathbf{L}_1 + \mathbf{L}_2) \cdot \mathbf{B}.$$

Dans le cas  $L = 2$  donc  $I = 0$ , on est dans un espace de dimension 10 ( $2L+1 = 5$ , la dégénérescence en  $L$ , fois 2, la dégénérescence de spin). On se place dans la base des  $|v, L, S_e, J, J_z\rangle$  pris dans cet ordre:

$$\begin{aligned} & |v, L, S_e, J = 5/2, J_z = 5/2\rangle; \\ & |v, L, S_e, J = 5/2, J_z = 3/2\rangle; |v, L, S_e, J = 3/2, J_z = 3/2\rangle; \\ & |v, L, S_e, J = 5/2, J_z = 1/2\rangle; |v, L, S_e, J = 3/2, J_z = 1/2\rangle; \\ & |v, L, S_e, J = 5/2, J_z = -1/2\rangle; |v, L, S_e, J = 3/2, J_z = -1/2\rangle; \\ & |v, L, S_e, J = 5/2, J_z = -3/2\rangle; |v, L, S_e, J = 3/2, J_z = -3/2\rangle; \\ & |v, L, S_e, J = 5/2, J_z = -5/2\rangle. \end{aligned}$$

#### Hamiltonien de structure hyperfine

Dans cette base, l'hamiltonien de structure hyperfine est diagonal. Ses éléments de matrice sont:

$$H_{hfs}(J, J', J_z, J'_z) = \delta_{J, J'} \delta_{J_z, J'_z} [J(J+1) - L(L+1) - S_e(S_e+1)] c_e v / 2,$$

avec  $c_e v$  une constante calculée numériquement dans [6] et qui dépend de  $v$  et de  $L$ .

#### Terme en $\mathbf{S}_e \cdot \mathbf{B} = \mathbf{S}_{ez} \mathbf{B}$ :

On utilise le théorème de Wigner-Eckart pour écrire:

$$\begin{aligned}
 & \langle v, L, Se, J, J_z | S_{e,z} | v, L, Se, J', J'_z \rangle \\
 &= \frac{1}{\sqrt{2J+1}} \langle J', 1; J'_z, 0 | J, J_z \rangle \langle v, L, Se, J | S_{e,z} | v, L, Se, J' \rangle.
 \end{aligned} \tag{3.3}$$

On utilise ensuite la formule 3.2 pour calculer l'élément de matrice réduit:

$$\begin{aligned}
 & \langle v, L, Se, J | S_{e,z} | v, L, Se, J' \rangle \\
 &= (-1)^{J'+L+S_e+1} \sqrt{(2J+1)(2J'+1)} \begin{Bmatrix} S_e & 1 & S_e \\ J' & L & J \end{Bmatrix} \langle Se | S_{e,z} | Se \rangle.
 \end{aligned} \tag{3.4}$$

Enfin, l'élément de matrice réduit qui apparaît dans cette équation peut être facilement calculé avec la formule 3.1. On obtient  $\langle Se | S_{e,z} | Se \rangle = \sqrt{3/2}$ .

#### Termes en $\mathbf{L} \cdot \mathbf{B} = L_z B$ :

Pour un moment cinétique  $L_{i,z}$  donné on peut écrire, en réutilisant la méthode du paragraphe précédent:

$$\begin{aligned}
 & \langle v, L, Se, J, J_z | L_{i,z} | v, L, Se, J', J'_z \rangle \\
 &= \frac{1}{\sqrt{2J+1}} \langle J', J'_z, 1, 0 | J, J_z \rangle \langle v, L, Se, J | L_{i,z} | v, L, Se, J' \rangle \\
 &= (-1)^{J'+L+S_e+1} \sqrt{2J'+1} \langle J', 1; J'_z, 0 | J, J_z \rangle \begin{Bmatrix} L & 1 & L \\ J' & S_e & J \end{Bmatrix} \langle v, L | L_{i,z} | v, L \rangle.
 \end{aligned} \tag{3.5}$$

Dans l'hamiltonien H, le terme

$$\mu_B B \langle v, L, Se, J, J_z | L_{e,z} - 2m_e/m_p (L_{1,z} + L_{2,z}) | v, L, Se, J', J'_z \rangle$$

peut être calculé en utilisant:

$$\begin{aligned}
 & \langle v, L, Se, J, J_z | L_{e,z} - 2m_e/m_p (L_{1,z} + L_{2,z}) | v, L, Se, J', J'_z \rangle \\
 &= (-1)^{J'+L+S_e+1} \sqrt{(2J'+1)(2L+1)} \langle J', 1; J'_z, 0 | J, J_z \rangle \begin{Bmatrix} L & 1 & L \\ J' & S_e & J \end{Bmatrix} \langle || L_{tot,z} || \rangle.
 \end{aligned} \tag{3.6}$$

L'élément de matrice réduit  $\langle ||L_{tot,z}|| \rangle$  est calculé numériquement dans [9].

### 3.2.3 Éclatement Zeeman

L'hamiltonien H est diagonalisé grâce à un programme Mathematica que j'ai écrit. On obtient les valeurs propres (fig. 3.1), qui correspondent aux corrections en énergies, et les nouveaux états propres. Les états propres sont des mélanges entre les vecteurs de base de même  $J_z$  mais de J différents. Il y a donc deux états qui restent purs (pour  $J_z = \pm 5/2$ ) et 8 états mélangés de la forme:

$$C_{5/2} |v, L, Se, J = 5/2, J_z\rangle + C_{3/2} |v, L, Se, J = 3/2, J_z\rangle.$$

Pour noter ces états, on leur associe les nombres quantiques J et  $\tilde{J}_z$ , avec  $\tilde{J}_z$  égal au  $J_z$  dont le  $C_{J_z}$  est le plus grand. Les coefficients de mélanges  $C_{J_z}$  dépendent de B, et pour des petites valeurs du champ magnétique (jusqu'à quelques Gauss), on aura un  $C_{J_z}$  environ égal à 1 et le second environ égal à 0.

Les coefficients  $c_e v$  et  $\langle ||L_{tot,z}|| \rangle$  ont des valeurs légèrement différentes en fonction de v et de L mais ici les différences ne sont pas visibles graphiquement.

## 3.3 Hamiltonien d'interaction lumière/ion

Maintenant que l'on a l'expression des niveaux d'énergies et des états propres, on cherche à calculer les taux de transitions.

### 3.3.1 Approximation quadrupolaire

#### Interaction lumière matière

L'hamiltonien d'interaction d'un système de  $\alpha$  particules en présence d'un champ électrique est donné en jauge de Coulomb par [10]:

$$W_{int} = \sum_{\alpha} \frac{1}{2m_{\alpha}} [\mathbf{p}_{\alpha} - q_{\alpha} \mathbf{A}(\mathbf{r}_{\alpha})]^2, \quad (3.7)$$

avec  $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = A_0 \exp\{i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t)\} \boldsymbol{\epsilon}$  le potentiel vecteur et  $\boldsymbol{\epsilon}$ , le vecteur polarisation. On développe le carré et on ne conserve que le terme linéaire en  $\mathbf{p}_{\alpha} \cdot \mathbf{A}$ . La probabilité de transition entre un niveau i et f est donnée par la règle d'or de Fermi [11]:

$$\mathcal{P}_{i,f} = 2\pi |\langle i | W_{int} | f \rangle|^2 \rho / \hbar,$$

avec  $\rho$  la densité d'états de  $|f\rangle$ .

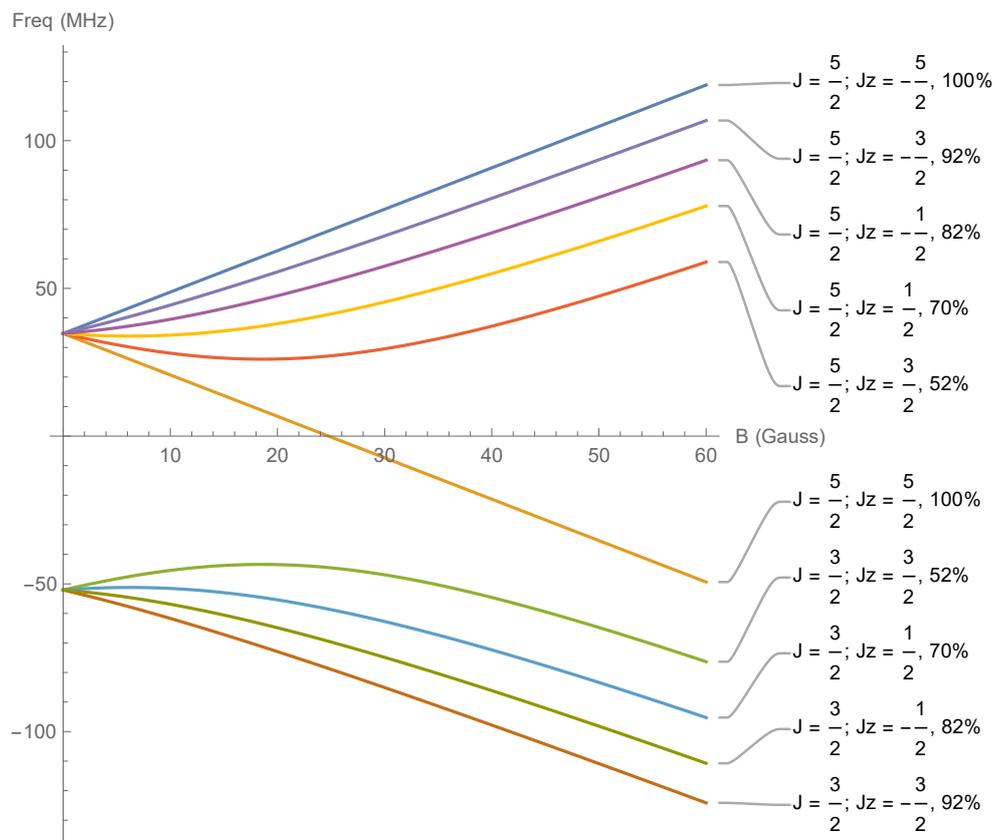


Figure 3.1: Évolution des énergies propres de l'hamiltonien yperfin et Zeeman en fonction de  $B$  pour l'état  $v = 3, L = 2$ . Les pourcentages indiqués correspondent au plus grand coefficient de mélange à  $B = 60$  Gauss.

### Approximation quadrupolaire électrique

Cette approximation consiste à développer l'exponentielle de  $\mathbf{A}$  au premier ordre. Le terme d'ordre 0 (qui correspond aux transitions dipolaire électriques) est supposé nul ici. On a donc:

$$\begin{aligned}\langle i | \mathbf{p} \cdot \mathbf{A} | f \rangle &= A_0 \exp\{i\omega t\} \langle i | \mathbf{p} \cdot \boldsymbol{\epsilon} \exp\{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}\} | f \rangle \\ &\approx A_0 \exp\{i\omega t\} \langle i | (\mathbf{p} \cdot \boldsymbol{\epsilon})(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) | f \rangle.\end{aligned}\quad (3.8)$$

On peut montrer que ce terme donne naissance à un terme proportionnel au tenseur d'ordre 2 quadrupolaire  $\mathcal{Q}^{(2)}$  et un autre terme correspondant aux transitions dipolaire magnétiques [12] (voir annexe B pour l'expression des deux termes et l'introduction du tenseur  $\mathcal{T}_q^{(2)}$ ). On note aussi une dépendance de la probabilité de transition à l'orientation et la polarisation du champ incident.

#### 3.3.2 Taux de transitions

La probabilité de transition dépend de l'élément de matrice:

$$\langle v' L' I F J' J'_z | \mathcal{Q}_q^{(2)} | v L I F J J_z \rangle.$$

En réutilisant la formule 3.2 et le théorème de Wigner-Eckart, il peut être réécrit:

$$(-1)^{J+L+F} \sqrt{2J+1} \langle J, 2; J_z, q | J', J'_z \rangle \begin{Bmatrix} L & F & J \\ J' & 2 & L' \end{Bmatrix} \langle v' L' | | \mathcal{Q}^{(2)} | | v L \rangle. \quad (3.9)$$

Les éléments de matrices  $\langle v' L' | | \mathcal{Q}^{(2)} | | v L \rangle$  sont calculés numériquement dans [13].

Le taux de transition est la probabilité de transition par unité de temps. On reprend les conventions de [13] pour les notations. Ainsi, le taux de transition total  $W$  est donné par la multiplication de trois termes:  $W = W_{pol} W_{hfs} W_{NR}$  (hfs pour 'hyperfine structure', pol pour polarisation et NR pour non relativiste). Ces trois termes sont explicités ci-dessous:

#### Influence de la polarisation

On a:

$$W_{pol}(J_z, J'_z) = \frac{15}{2J+1} \langle J, 2; J_z, q | J', J'_z \rangle^2 |\mathcal{T}_q^{(2)}|^2,$$

avec  $\mathcal{T}_q^{(2)}$  les composantes standard du tenseur  $\mathcal{T}_{i,j}^{(2)} = (\mathbf{k}_i \boldsymbol{\epsilon}_j + \mathbf{k}_j \boldsymbol{\epsilon}_i) / 2$  où  $i, j = x, y, z$ . Les expressions utilisées sont prises dans [14]. On remarque que le coefficient de Clebsch-Gordan ici n'est non nul que si  $q = J'_z - J_z$ .

Ce terme prends en compte la polarisation et la direction du champ incident. Un schéma qui résume la géométrie du problème est donné fig. A.2.  $\mathcal{T}_q^{(2)}$  est une fonction des angles d'Euler

$(\alpha, \beta, \gamma)$ , voir Annexe A.

### Influence de la structure hyperfine

On montre que pour les L pairs:

$$W_{hfs} = (2L + 1)(2J + 1)(2J' + 1) \begin{Bmatrix} L & F & J \\ J' & 2 & L \end{Bmatrix}^2.$$

### Taux de transition sans effets de spins

Enfin le taux de transition sans prendre en compte le spin est :

$$W_{NR} = \frac{\pi\omega_{i,f}^2}{15\epsilon_0 c^3 \hbar^2 (2L + 1)} I_0 |\langle v' L' | \mathcal{Q}^{(2)} | v L \rangle|^2,$$

où  $\omega_{i,f} = \frac{E_f - E_i}{\hbar}$  et  $I_0$  est la puissance surfacique du faisceau incident. Pour les calculs qui suivent, on fixe  $I_0 = 10^4$  W/m<sup>2</sup>.

## 3.4 Spectre (E2) de H<sub>2</sub><sup>+</sup>

### 3.4.1 Règles de sélections

Les règles de sélection pour les transitions quadrupolaires sont déterminées à partir de l'équation 3.9. Il faut aussi savoir que, d'après [11] Tome 2 complément Ex, l'élément de matrice  $\langle v' L' | \mathcal{Q}^{(2)} | v L \rangle$  est proportionnel au coefficient de Clebsch-Gordan  $\langle L, 2; 0, 0 | L', 0 \rangle$ , qui n'est non nul que si L et L' sont de même parité. Les règles de sélections sont:

- $\Delta L = 0, \pm 2$  ; sauf ( $L = 0 \rightarrow L' = 0$ ) qui est interdit;
- $\Delta J = 0, \pm 1, \pm 2$  et  $J + J' \geq 2$ .

La première règle peut être retrouvée avec les règles du coefficient 6j de 3.9 et la propriété de l'élément de matrice. La seconde est déduite des règles du coefficient de Clebsch-Gordan de 3.9.

### 3.4.2 Le spectre attendu

J'ai rassemblé ces formules et je les ai utilisées pour calculer les taux de transitions entre les états propres calculés précédemment. Il y a au total 400 transitions évaluées, mais beaucoup d'entre elles sont d'intensité nulles. Le programme permet de retrouver les résultats numériques indiqué donnés dans [13] pour d'autres transi.

L'allure du spectre final dépend de l'intensité du champ magnétique B, de l'angle  $\beta$  entre la direction du faisceau incident  $\mathbf{k}$  et  $\mathbf{B}$ , et de la polarisation de la lumière (donc des deux angles  $\theta$ ,

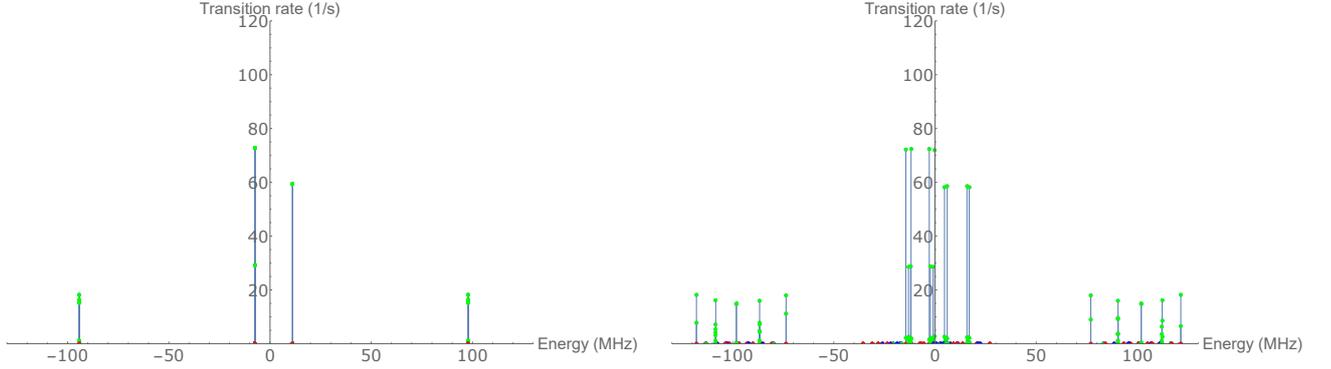


Figure 3.2: **À gauche:** spectre en bâton avec  $\beta = \theta = \varphi = B = 0$ . **À droite:** même chose avec  $B = 10$  Gauss. Ces graphes illustrent la levée de dégénérescence par l'effet Zeeman. Le zéro des abscisses est l'énergie de la transition sans effets de spins. La couleur des points correspond à  $|q|$ :  $|q| = 0$  est en rouge,  $|q| = 2$  est en vert et  $|q| = 2$  est en bleu.

$\varphi$  avec  $\epsilon = (\cos \theta, \sin \theta \exp\{i\varphi\}, 0)$ , dans le référentiel  $K'$ , voir annexe A et fig. A.2). À  $B = 0$ , on retrouve le spectre de la structure hyperfine de  $H_2^+$ . Pour les  $B$  plus grands, on a un éclatement des raies, et les intensités changent légèrement à cause des coefficients de mélange (fig 3.2).

Les angles font varier les valeurs relatives des taux de transitions, par exemple fig. 3.3. Les dépendances aux angles ont des expressions générales compliquées et difficiles à interpréter. Pour donner un exemple simple, dans le cas d'une polarisation linéaire ( $\varphi = 0$ ), on a:

1. Pour une transition  $|\Delta J_z| = 0$ , les intensités sont proportionnelles à  $\sin^2 2\beta \cos^2 \theta$ .
2. Pour une transition  $|\Delta J_z| = 1$ , les intensités sont proportionnelles à  $\cos^2 \theta [\cos^4 \beta + \sin^4 \beta] + \cos^2 \beta [\sin^2 \theta - 2 \cos^2 \theta \sin^2 \beta]$ .
3. Pour une transition  $|\Delta J_z| = 2$ , les intensités sont proportionnelles à  $\sin^2 \beta [\cos^2 \beta \cos^2 \theta + \sin^2 \theta]$ .

Ces dépendances sont bien vérifiées dans le spectre. On peut prendre le cas de la transition ( $v = 0, L = 2, J = 5/2, J_z = 5/2$ )  $\rightarrow$  ( $v = 3, L = 2, J = 5/2, J_z = 5/2$ ), pour laquelle  $q = \Delta J_z = 0$ . Elle correspond au plus grand pic du spectre de la figure 3.3. En faisant varier  $\beta$ , on observe que le pic est maximal pour  $\beta = \pi/4$  et nul pour  $\beta = 0$  (il n'est pas visible fig. 3.2). On remarque par ailleurs que les dépendances aux angles résumées ci-dessus permettent d'expliquer pourquoi il n'y a que des transitions  $|q| = 1$  dans les spectres de la figure 3.2, et pourquoi il n'y en a plus dans le spectre de la figure 3.3.

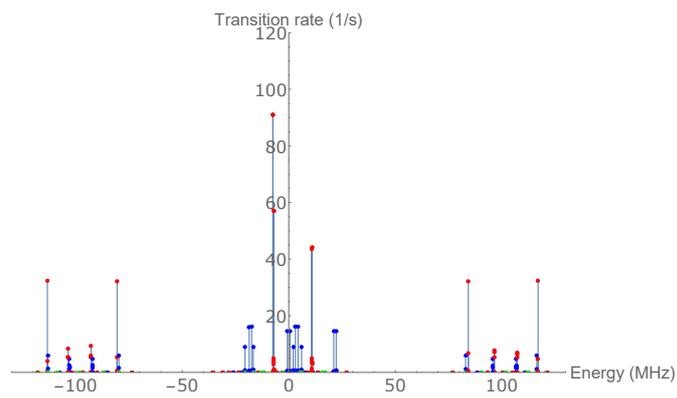


Figure 3.3: Spectre avec  $B = 10$  Gauss,  $\beta = \pi/4$ ,  $\theta = \varphi = 0$ .

## 4 Conclusion

Au cours de mon stage, j'ai étudié le fonctionnement d'un piège à ions et les méthodes utilisées pour refroidir les ions  $\text{H}_2^+$ . L'asservissement d'un laser qui sert à refroidir les ions  $\text{Be}^+$  sur lequel j'ai pu travailler est détaillé. Enfin, l'étude théorique des transitions quadrupolaire est ensuite présentée, avec la description des idées derrière le code que j'ai écrit pour calculer les taux de transitions.

Ce stage m'a permis de me familiariser avec le domaine des ions piégés et de la métrologie. J'ai aussi apprécié pouvoir me plonger dans l'étude théorique de l'interaction ions/laser. Pour mener à bien ces calculs, j'ai pu m'initier à Mathematica et j'ai découvert l'algèbre angulaire en physique quantique.

## References

- [1] J.-Ph. Karr et al. “Hydrogen molecular ions for improved determination of fundamental constants”. In: *Physical Review A* 94.5 (Nov. 2016). ISSN: 2469-9934.
- [2] Thomas Louvradoux. “Spectroscopie à haute résolution de  $H_2^+$ : Production et refroidissement sympathique d’ions piégés.” PhD thesis. Sorbonne Université, 2019.
- [3] Johannes Heinrich. “A  $Be^+$  Ion Trap for  $H_2^+$  Spectroscopy”. PhD thesis. Sorbonne Université, 2018.
- [4] Abdessamad MBARDI. “Spectroscopie d’ions  $H_2^+$  piégés: développement d’un laser à 9.17  $\mu m$  référencé au système international d’unité”. PhD thesis. Sorbonne Université, 2023.
- [5] Franck Bielsa. “Spectroscopie vibrationnelle à deux photons de l’ion  $H_2^+$  : développement d’une source laser à 9.166 microns”. PhD thesis. Sorbonne Université, 2007.
- [6] Jean-Philippe Karr et al. “Vibrational spectroscopy of  $H_2^+$ : Hyperfine structure of two-photon transitions”. In: *Phys. Rev. A* 77 (6 June 2008), p. 063410.
- [7] Laurent Hilico et al. “Ab initio calculation of the  $J = 0$  and  $J = 1$  states of the  $H_2^+$ ,  $D_2^+$  and  $HD^+$  molecular ions”. In: *The European Physical Journal D* 12 (Apr. 2000), pp. 449–466.
- [8] Albert Messiah. *Quantum Mechanics Volume II*. Elsevier Science B.V., 1961.
- [9] Jean-Philippe Karr, Vladimir I. Korobov, and Laurent Hilico. “Vibrational spectroscopy of  $H_2^+$  : Precise evaluation of the Zeeman effect”. In: *Physical Review A* 77.6 (June 2008). ISSN: 1094-1622.
- [10] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, and G. Grynberg. *Photons et atomes: introduction à l’électrodynamique quantique*. Savoirs actuels. EDP sciences, 2001. ISBN: 9782868835352.
- [11] Cohen-Tannoudji Claude et al. *Mécanique quantique . Tome I-II / Claude Cohen-Tannoudji, Bernard Diu, Franck Laloe*. fre. [2e] Ed. rev., corr. et augm. d’une bibliogr. étendue. Enseignement des sciences. Paris: Hermann, 1980. ISBN: 2-7056-5733-9.
- [12] W. Somogyi, S. N. Yurchenko, and A. Yachmenev. “Calculation of electric quadrupole linestrengths for diatomic molecules: Application to the  $H_2$ ,  $CO$ ,  $HF$ , and  $O_2$  molecules”. In: *The Journal of Chemical Physics* 155.21 (Dec. 2021), p. 214303.
- [13] V. I. Korobov et al. “Laser-stimulated electric quadrupole transitions in the molecular hydrogen ion  $H_2^+$ ”. In: *Phys. Rev. A* 97 (3 Mar. 2018), p. 032505.
- [14] P. Danev et al. “Hyperfine structure and electric quadrupole transitions in the deuterium molecular ion”. In: *Phys. Rev. A* 103 (1 Jan. 2021), p. 012805.

- [15] Pascal P. Man. “Wigner active and passive rotation matrices applied to NMR tensor”. In: *Concepts in Magnetic Resonance Part A* 45A.1 (2016), e21385. eprint: <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1002/cmr.a.21385>.

## A Annexe: Angles d'Euler et matrices de rotations

Au cours du calcul du taux de transitions, on passe du référentiel du laboratoire avec l'axe des  $z$  aligné avec le champ  $\mathbf{B}$  (noté  $K$ ) au référentiel du faisceau incident (noté  $K'$ ) dont l'axe des  $z'$  est aligné avec  $\mathbf{k}$ . On veut donc pouvoir passer de l'un à l'autre avec les angles d'Euler. Il y a des subtilités de notations quand on traite ces rotations. Pour une rotation, on définit, avec les mêmes conventions que Mathematica,  $R(\theta, \mathbf{n})$ , la matrice de rotation autour de l'axe  $\mathbf{n}$  et d'un angle  $\theta$ . Ici,  $\theta$  est compté positivement dans le sens trigonométrique quand l'axe  $\mathbf{n}$  sort de la feuille vers nous. Le but est d'établir le lien entre:

$$\begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix} \text{ et } \begin{pmatrix} x' \\ y' \\ z' \end{pmatrix}.$$

### Matrice de rotation passive ou active.

Tout d'abord, il ne faut pas confondre les matrices de rotation active (rotation d'un objet dans un système de coordonnées fixes) et une rotation passive (rotation des axes avec un objet fixe). Pour une même rotation, si c'est une rotation active on utilise la matrice  $R(+\theta, n)$ , et pour une rotation passive  $R(-\theta, n)$ . On voit dans la figure A.1 que les deux rotations sont équivalentes (si on ramène  $x'$  en  $x$  et  $y'$  en  $y$ ). Il faudra par la suite composer des rotations successives. Pour des rotations passives, on a:  $R_{\text{passive,tot}} = R_3(-\theta_3, n_3)R_2(-\theta_2, n_2)R_1(-\theta_1, n_1)$  et pour des rotations actives:  $R_{\text{active,tot}} = R_3(+\theta_3, n_3)R_2(+\theta_2, n_2)R_1(+\theta_1, n_1)$ . Ici on cherche une matrice de rotation passive.

### Matrice de passage de $K$ à $K'$ ou $K'$ à $K$ .

La seconde chose à ne pas confondre est la matrice de passage de  $\begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix}$  à  $\begin{pmatrix} x' \\ y' \\ z' \end{pmatrix}$

et son inverse. On a:

$R(\theta, n)^{-1} = R(-\theta, n)$  et  $\begin{pmatrix} x' \\ y' \\ z' \end{pmatrix} = R(\theta, n) \times \begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix}$ . Par ailleurs, on rappelle que  $(ABC)^{-1} = C^{-1}B^{-1}A^{-1}$ . Une autre chose à noter est que les matrices de rotations appartiennent à  $SO(3)$ , leur inverse est donc leur transposée.

Finalement, dans notre cas, on veut la matrice de passage qui permet de retrouver  $r$  à partir de  $r'$  après une rotation passive, c'est-à-dire  $R_{\text{passive,tot}}^{-1} = R_1(\theta_3, n_3)R_2(\theta_2, n_2)R_3(\theta_1, n_1)$ .

### Angles d'Euler.

Une manière de noter les angles de rotations est d'utiliser les angles d'Euler. Il existe beaucoup de conventions différentes (voir [wikipedia](https://fr.wikipedia.org/wiki/Angles_d'Euler), pour une liste qui n'est pas exhaustive).

Les angles d'Euler consistent en trois rotations autour de trois axes différents. Il existe là aussi des conventions différentes selon les axes que l'on choisit.

### Convention utilisée

La convention utilisée ici est de décrire la rotation avec les trois angles  $(\gamma, \beta, \alpha)$ . Ici les angles sont comptés positivement dans le sens anti-trigonométrique. On a  $\gamma$  la première rotation autour de  $x$ ,  $\beta$  la seconde rotation autour du nouvel axe  $y$  et enfin  $\alpha$ , la troisième rotation autour du

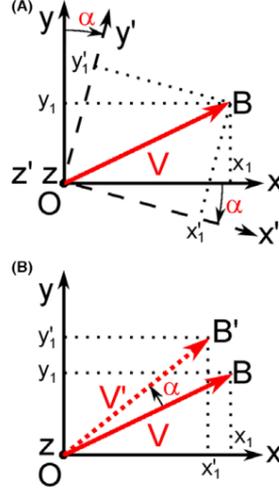


Figure A.1: D'après [15]

nouvel axe  $z$ . La matrice de rotation obtenue est:

$$M_{rot} = \begin{pmatrix} \cos \alpha \cos \beta \cos \gamma - \sin \alpha \sin \gamma & \cos \beta \cos \gamma + \cos \alpha \sin \gamma & -\cos \gamma \sin \beta \\ -\cos \gamma \sin \alpha - \cos \alpha \cos \beta \sin \gamma & \cos \alpha \cos \gamma - \cos \beta \sin \alpha \sin \gamma & \sin \beta \sin \gamma \\ \cos \alpha \sin \beta & \sin \alpha \sin \beta & \cos \beta \end{pmatrix}.$$

Le problème est invariant par rotation autour de l'axe du champ  $\mathbf{B}$  donc dans les formules finales, il n'y a pas de dépendance en  $\gamma$ . Par ailleurs, on définit la polarisation dans le référentiel  $K'$  comme:

$$\epsilon = \begin{pmatrix} \cos \theta \\ \sin \theta \exp\{i\varphi\} \\ 0 \end{pmatrix}.$$

L'angle  $\theta$  et l'angle  $\alpha$  correspondent à une rotation autour du même axe. C'est pourquoi dans les formules il n'y a que  $\alpha - \theta$  qui apparaît. On peut donc fixer  $\gamma = \alpha = 0$ . Les trois angles qui restent importants sont  $\beta, \theta$  et  $\varphi$ , voir fig. A.2.

## B Annexe: Interactions (E2) et (M1)

On cherche à évaluer:  $\langle i | (\mathbf{p} \cdot \epsilon)(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) | f \rangle$  et à montrer qu'il donnera naissance à un terme qui décrit les interactions dipolaires magnétique ( $\Gamma_{i \rightarrow f, M1}$ ) et un terme d'interaction quadrupolaire électrique  $\Gamma_{i \rightarrow f, E2}$ .

D'après l'identité de Binet-Cauchy

$$(\mathbf{a} \cdot \mathbf{c})(\mathbf{b} \cdot \mathbf{d}) = (\mathbf{a} \wedge \mathbf{b}) \cdot (\mathbf{c} \wedge \mathbf{d}) + (\mathbf{a} \cdot \mathbf{d})(\mathbf{b} \cdot \mathbf{c}),$$

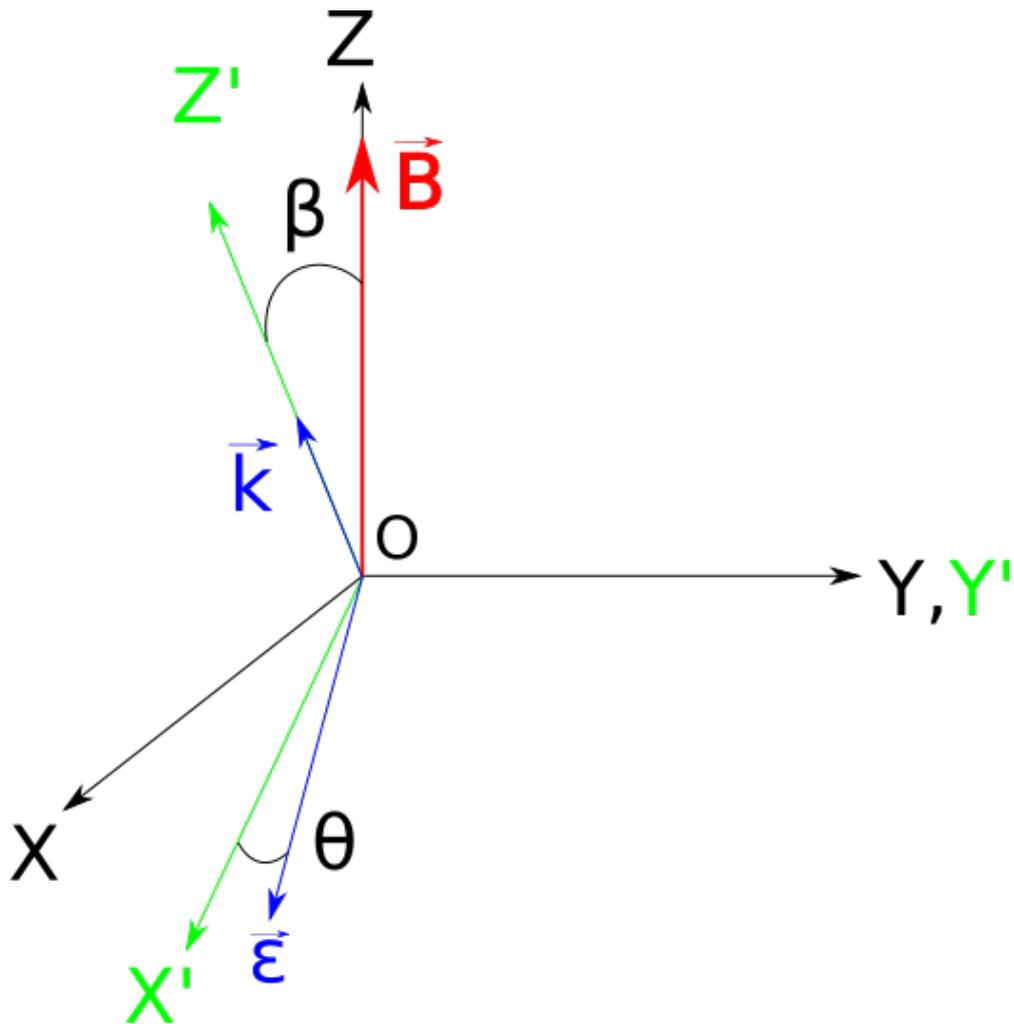


Figure A.2: Schéma des angles importants.  $Z, Z', X$  et  $X'$  sont dans le même plan, perpendiculaire à  $Y$  et  $Y'$ .  $X', \epsilon, Y$  sont dans un autre plan, perpendiculaire à  $Z'$ .

on a

$$(\boldsymbol{\epsilon} \cdot \mathbf{p})(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) = (\boldsymbol{\epsilon} \wedge \mathbf{k}) \cdot (\mathbf{p} \wedge \mathbf{r}) + (\boldsymbol{\epsilon} \cdot \mathbf{r})(\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}). \quad (\text{B.1})$$

Dans le premier terme, on reconnaît  $(\boldsymbol{\epsilon} \wedge \mathbf{k}) \propto \mathbf{rot} \mathbf{A} = \mathbf{B}$  et  $(\mathbf{p} \wedge \mathbf{r}) = \mathbf{L}$ . Il correspond donc au terme magnétique dipolaire, M1:  $\Gamma_{i \rightarrow f, M1} \propto |\langle i | \mathbf{B} \cdot \mathbf{L} | f \rangle|^2$ .

En utilisant  $[\widehat{H}_0, \widehat{\mathbf{r}}] = -i\hbar/m\widehat{\mathbf{p}}$ , le second terme peut être réécrit comme:  $(\boldsymbol{\epsilon} \cdot \mathbf{r})(\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}) \propto (\boldsymbol{\epsilon} \cdot \mathbf{r})(\mathbf{k} \cdot (\widehat{H}_0 \widehat{\mathbf{r}} - \widehat{\mathbf{r}} \widehat{H}_0))$ . On cherche donc à évaluer:  $\langle i | (\boldsymbol{\epsilon} \cdot \mathbf{r})(\mathbf{k} \cdot (\widehat{H}_0 \widehat{\mathbf{r}} - \widehat{\mathbf{r}} \widehat{H}_0)) | f \rangle$ . Or,  $\widehat{H}_0 |i, f\rangle = E_{i,f} |i, f\rangle$ , donc

$$\langle i | (\boldsymbol{\epsilon} \cdot \mathbf{r})(\mathbf{k} \cdot (\widehat{H}_0 \widehat{\mathbf{r}} - \widehat{\mathbf{r}} \widehat{H}_0)) | f \rangle \propto (E_i - E_f) \langle i | (\boldsymbol{\epsilon} \cdot \mathbf{r})(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) | f \rangle.$$

En pratique, on écrit  $(\boldsymbol{\epsilon} \cdot \mathbf{r})(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) = \boldsymbol{\epsilon} \cdot (\widehat{\mathbf{r}} \otimes \widehat{\mathbf{r}}) \cdot \mathbf{k}$  où le tenseur  $\widehat{\mathbf{r}} \otimes \widehat{\mathbf{r}}$  est la matrice  $M_{ij} = r_i r_j$  avec  $i, j = x, y, z$ . Le  $i$  en indice n'a rien avoir avec l'état noté  $|i\rangle$ .

Pour une onde plane, on a

$$\begin{aligned} \mathbf{k} \cdot \mathbf{E} &= 0 \\ \mathbf{k} \cdot \mathbf{1} \cdot \mathbf{E} &= 0 \\ \mathbf{k} \cdot (-r^2/3 \times \mathbf{1}) \cdot \mathbf{E} &= 0. \end{aligned} \quad (\text{B.2})$$

En conséquence, on peut écrire  $\mathbf{k} \cdot \widehat{\mathbf{r}} \otimes \widehat{\mathbf{r}} \cdot \boldsymbol{\epsilon} = \mathbf{k} \cdot [\widehat{\mathbf{r}} \otimes \widehat{\mathbf{r}} - r^2/3 \times \mathbf{1}] \cdot \boldsymbol{\epsilon} = \mathbf{k} \cdot \mathcal{Q}^{(2)} \cdot \boldsymbol{\epsilon}$ , où  $\mathcal{Q}_{i,j}^{(2)} = (r_i r_j - \delta_{i,j} r^2/3)$  est le tenseur quadrupolaire. Finalement, on peut dire que le deuxième terme de B.1,  $\Gamma_{i \rightarrow f, E2} \propto \langle i | \mathcal{Q}^{(2)} | f \rangle$ , est le terme d'interaction quadrupolaire (E2).

Dans l'article [13], on introduit le tenseur  $\mathcal{T}_q^{(2)}$ . Il sert à réécrire les expressions données ci-dessus et à mettre en valeur la dépendance du taux de transition aux angles. Dans une base cartésienne, on a  $\mathcal{T}_{i,j}^{(2)} = (\mathbf{k}_i \boldsymbol{\epsilon}_j + \mathbf{k}_j \boldsymbol{\epsilon}_i)/2$  où  $i, j = x, y, z$ . Par ailleurs, on a vu que  $\mathcal{Q}^{(2)}$  est proportionnel à  $(\boldsymbol{\epsilon} \cdot \mathbf{r})(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) = \boldsymbol{\epsilon} \cdot (\widehat{\mathbf{r}} \otimes \widehat{\mathbf{r}}) \cdot \mathbf{k}$ . On définit le produit scalaire entre les deux tenseurs comme:

$$\mathcal{T}^{(2)} \cdot \mathcal{Q}^{(2)} = \sum_{i,j} \mathcal{T}_{i,j}^{(2)} \mathcal{Q}_{i,j}^{(2)}.$$

Avec cette définition, on peut retrouver les expressions données pour les taux de transitions de [13].