

Stabilisation d'un QCL à 10 μm à l'aide d'un peigne de fréquence optique

B. Argence^{1,*}, R. Santagata¹, D. B. A. Tran¹, B. Chanteau¹, O. Lopez¹,
D. Nicolodi², M. Abgrall², C. Chardonnet¹, C. Daussy¹, B. Darquié¹,
Y. Le Coq², A. Amy-Klein¹

¹ LPL, Université Paris 13, CNRS

² LNE-SYRTE, Observatoire de Paris, CNRS, UPMC

* (adresse actuelle) LKB, UPMC-Sorbonne Université, ENS, Collège de France, CNRS

Expériences à ultra haute résolution avec des molécules

- Complémentaires aux atomes
 - Structures plus complexes, physique plus riche
- Intérêts
 - Physique moléculaire, étude atmosphérique and astrophysique
 - Tests fondamentaux de physique
 - Mesure de constantes fondamentales et de leur variation éventuelle
 - Violation de parité : différentes fréquences d'absorption entre 2 énantiomères d'une molécule chirale
 - ...
- La plupart de ces expériences nécessitent une spectroscopie à (très) haute résolution

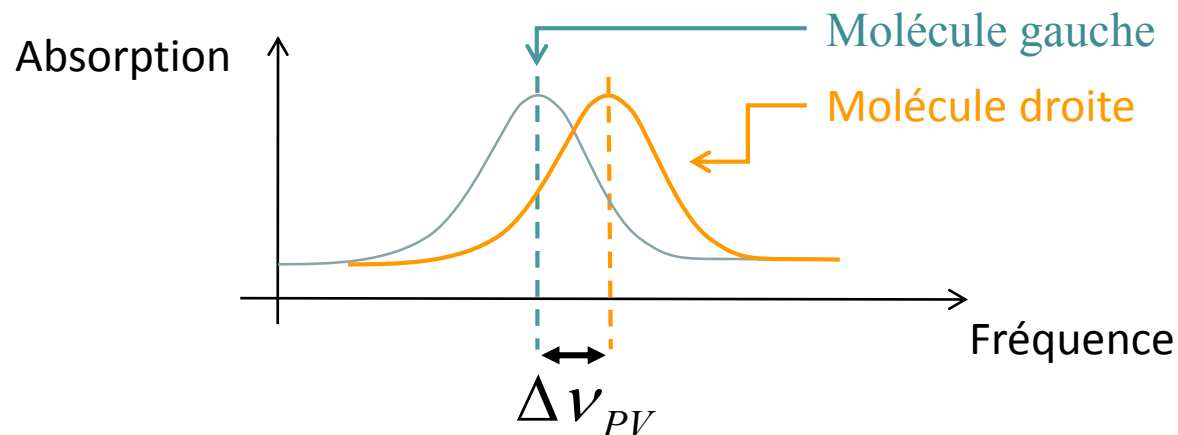
Test de non-conservation de la parité dans les molécules

- Contexte

- La violation de parité a été prédite en 1956
- Elle est liée à l'interaction faible
- Elle a été observée en physique nucléaire et dans les atomes, mais jamais dans les molécules, car trop faible

- Principe du test

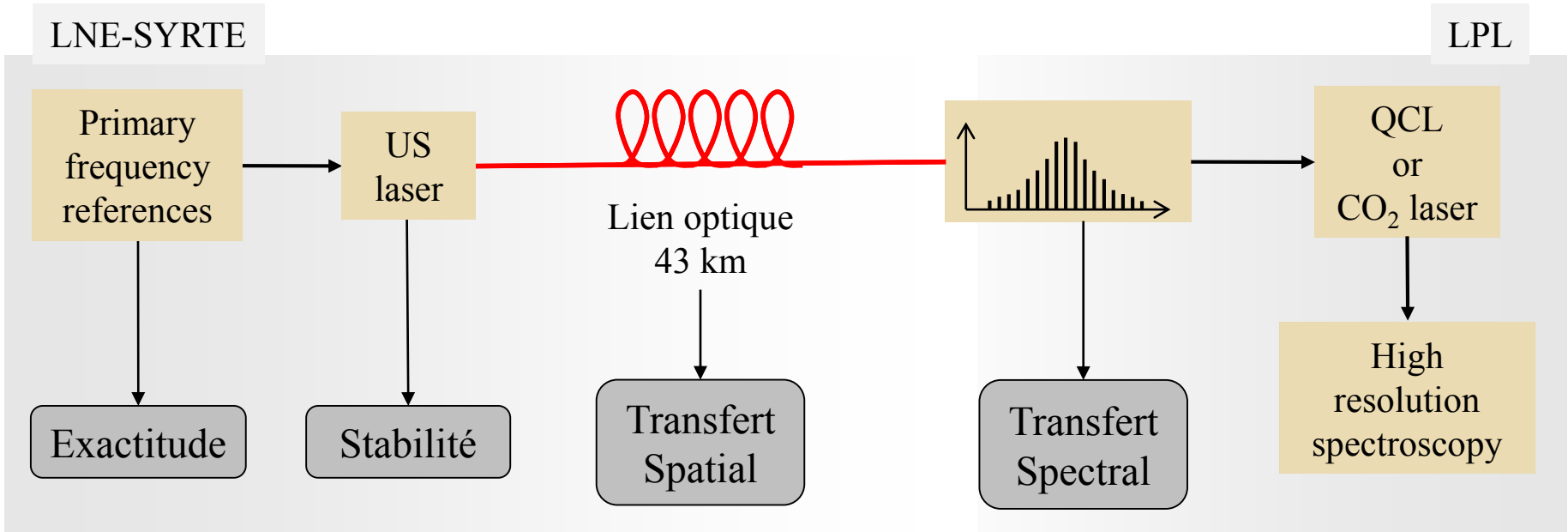
- Spectroscopie à très haute résolution d'une molécule chirale
- Différence de fréquence relative inférieure à 10^{-13}



Challenge de la ultra haute résolution avec des molécules

- Les lasers moyen infrarouge (MIR) peuvent sonder la « molecular fingerprint region » comprenant de nombreuses transitions rovibrationnelles intenses
 - 3 - 20 μm accessible avec QCL
- Techniques usuelles de stabilisation à 10 μm (cavité, raie moléculaire)
 - Stabilité $\geq 10^{-14}$ limitée par le bruit de détection et les coatings
 - Exactitude $\geq 10^{-12}$ limitée par les effets systématiques
- Extension des meilleures techniques de stabilisation au MIR
 - Peigne de fréquence MIR en cours de développement
 - => Peigne de fréquence optique : fréquence MIR est comparée avec une harmonique élevée du peigne de fréquence

Transfert de la stabilité de fréquence du NIR => MIR



Argence et al, *Nature Phot* (2015)

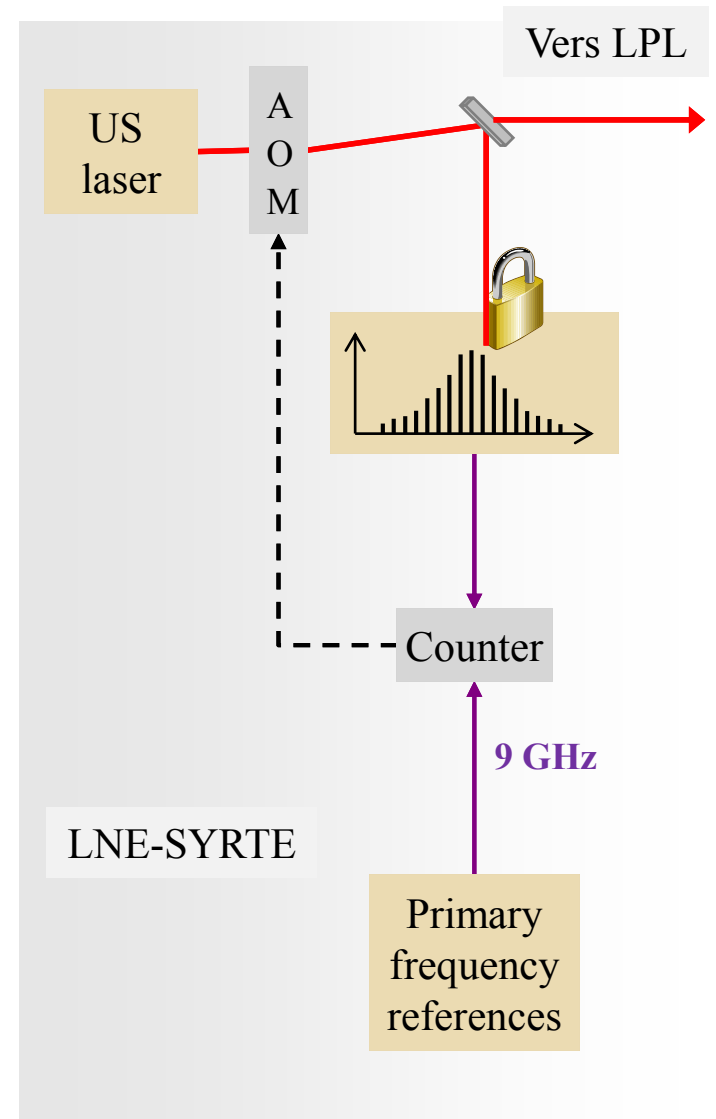
Référence de fréquence NIR à 1,54 μm - LNE-SYRTE

- Laser stabilisé sur une cavité ultra-stable (US)
 - stabilité à 1 s de $\sim 10^{-15}$
 - Horloges primaires :
 - exactitude (maser H) $\sim 10^{-14}$ à 100s
 - exactitude (fontaine Cs) $\sim 3 \cdot 10^{-16}$
- => Mesure de la fréquence absolue
=> Correction des dérives de la cavité US ($\sim \text{Hz/s}$)

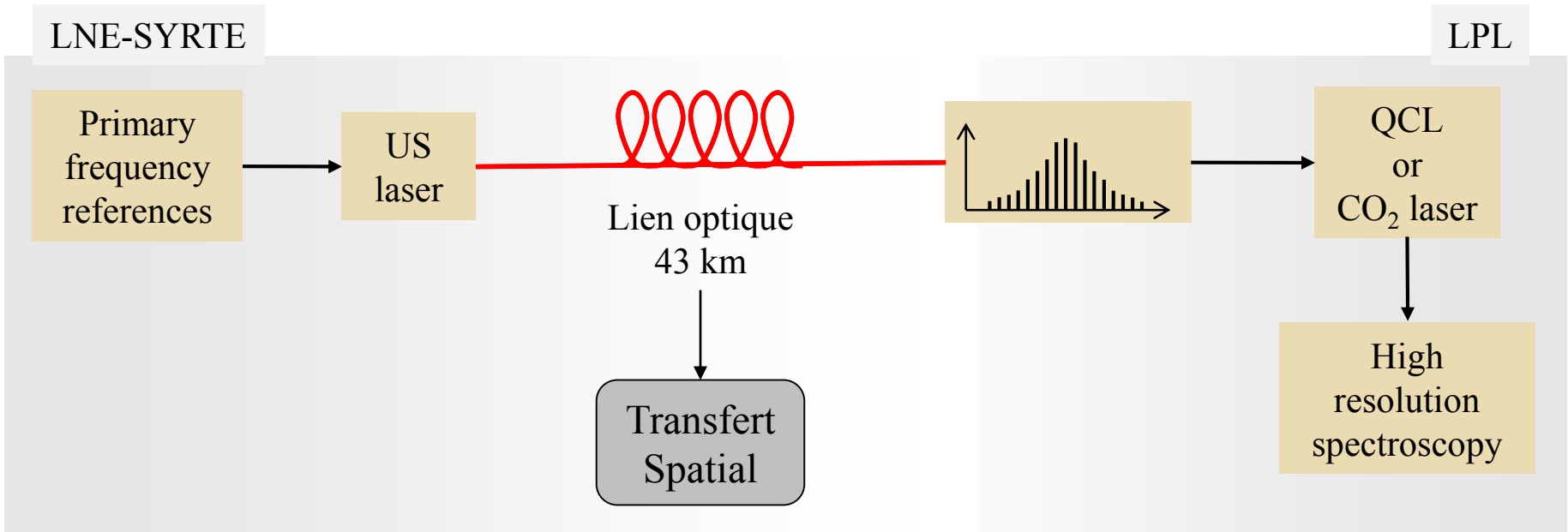


Systèmes de Référence Temps-Espace

Daniele Nicolodi
Michel Abgrall
Yann Le Coq

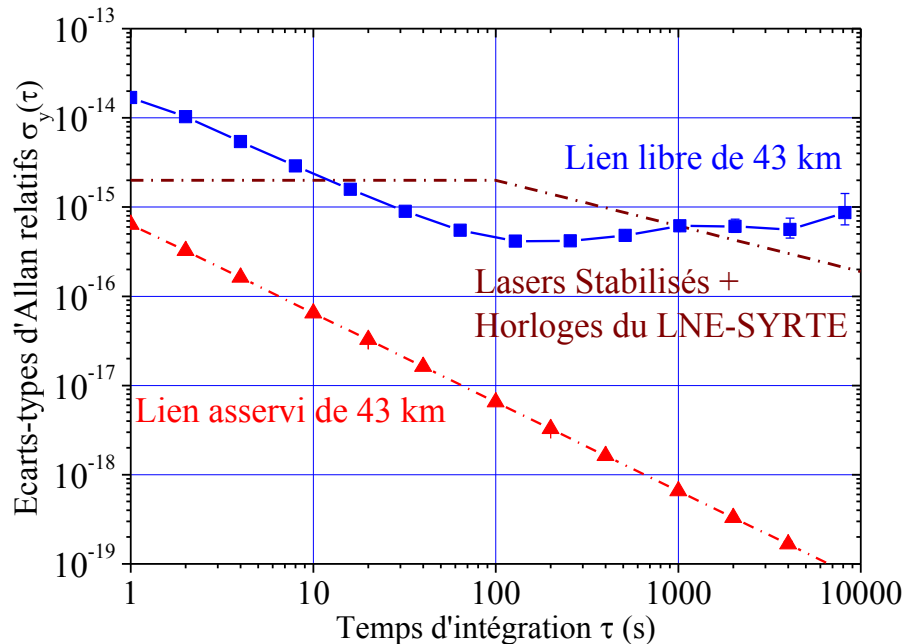
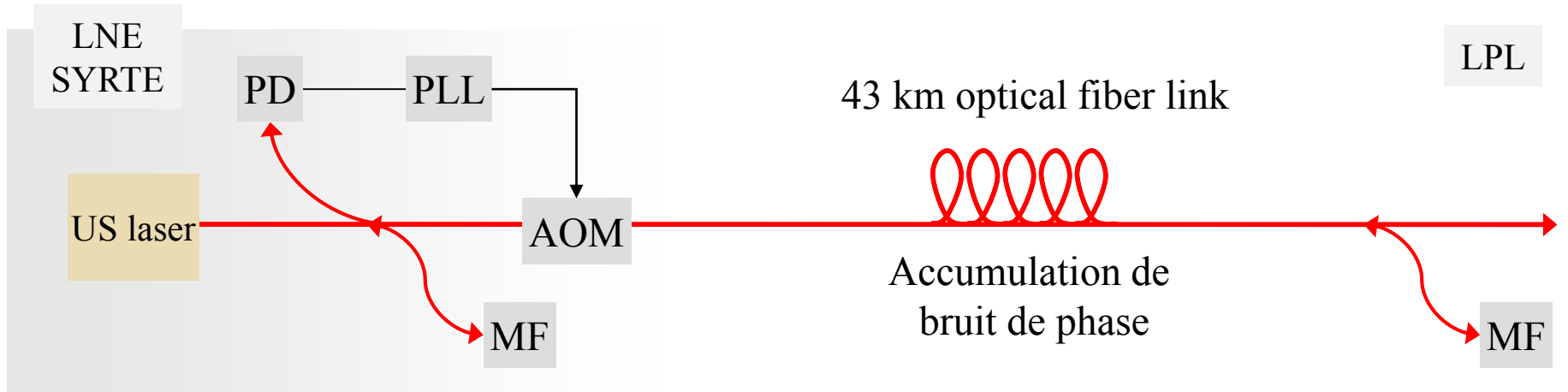


Transfert de la stabilité de fréquence du NIR => MIR



Argence et al, *Nature Phot* (2015)

Lien optique fibré LNE-SYRTE / LPL

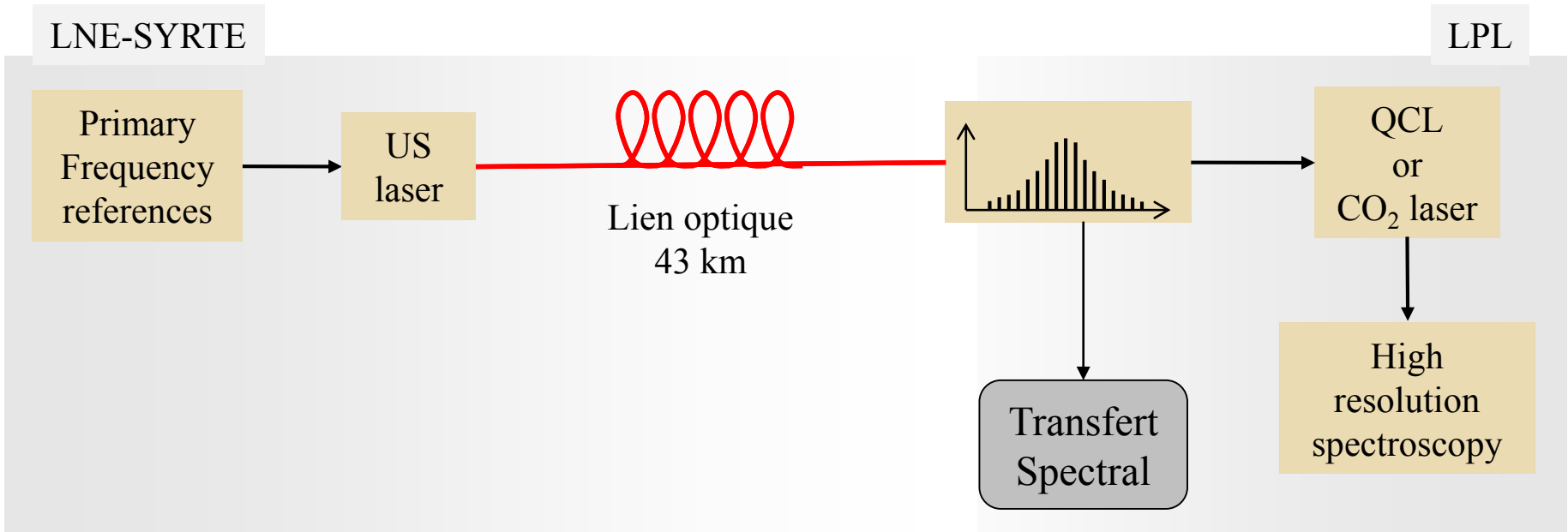


correction du bruit de phase permet
le transfert du laser US sans
dégradation de la stabilité

En collaboration avec G. Santarelli et
P.-E. Pottie

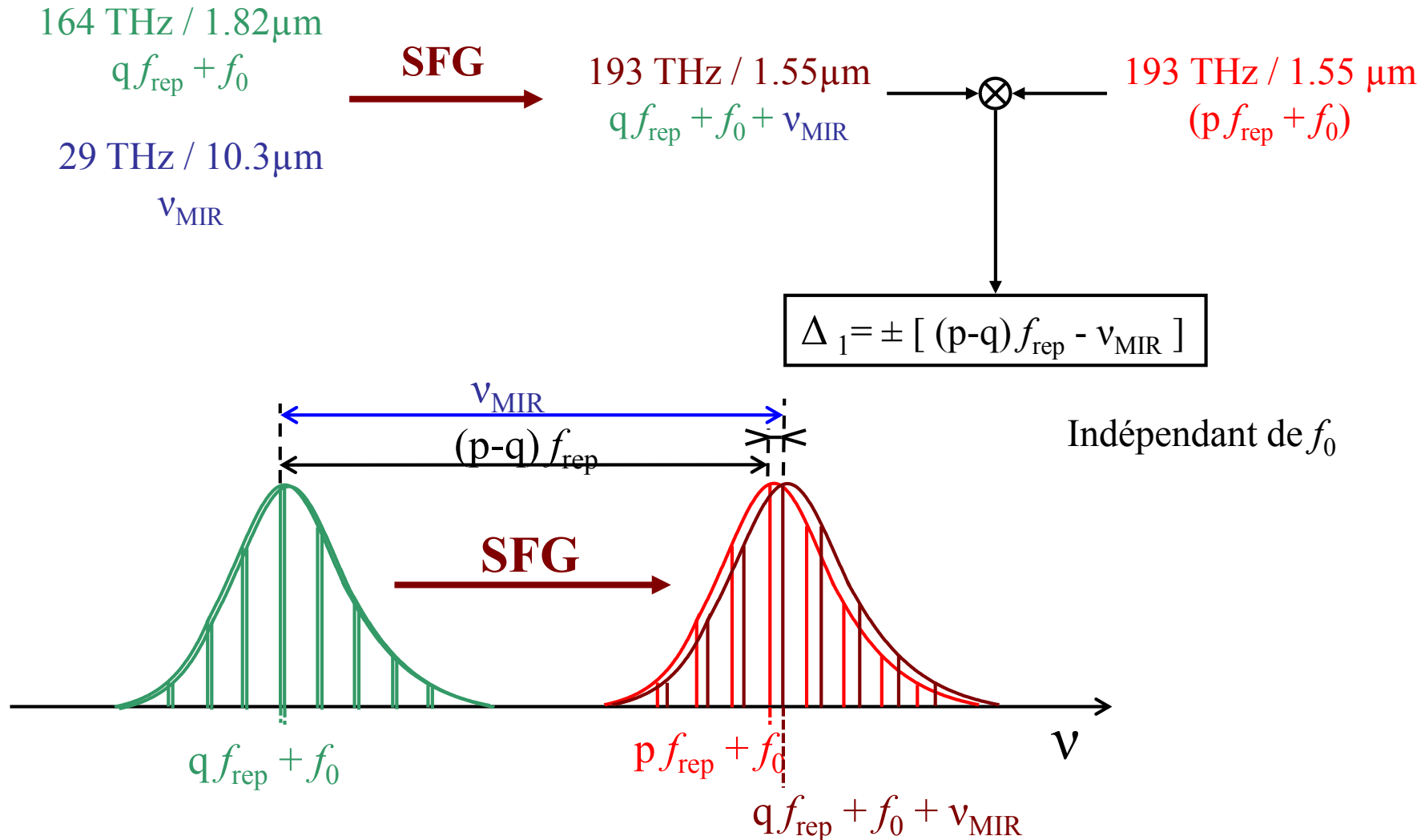
Ecart-type d'Allan avec recouvrement
Compteur Π sans temps mort

Transfert de la stabilité de fréquence du NIR => MIR



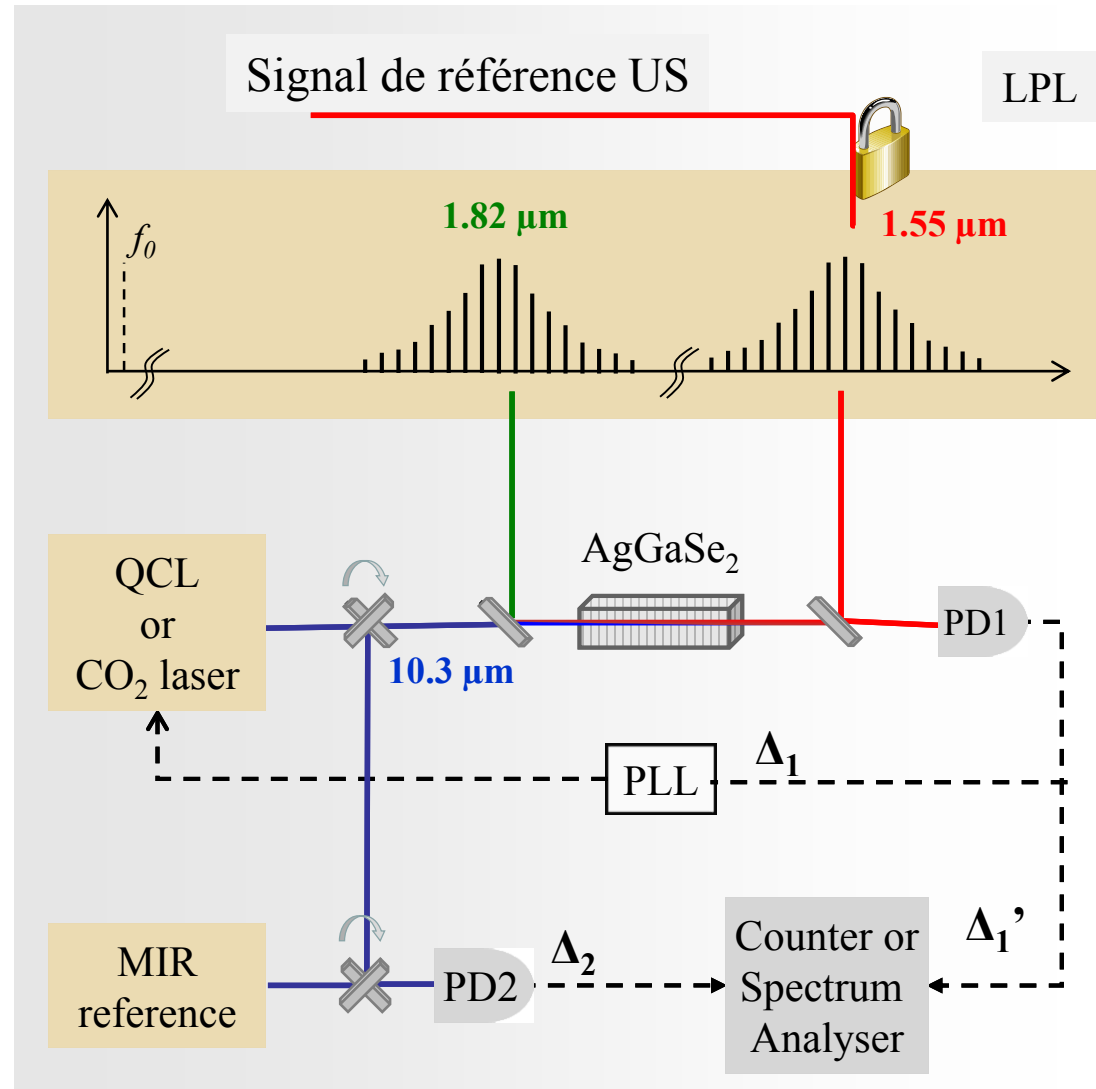
Argence et al, *Nature Phot* (2015)

Transfert de stabilité du NIR au MIR

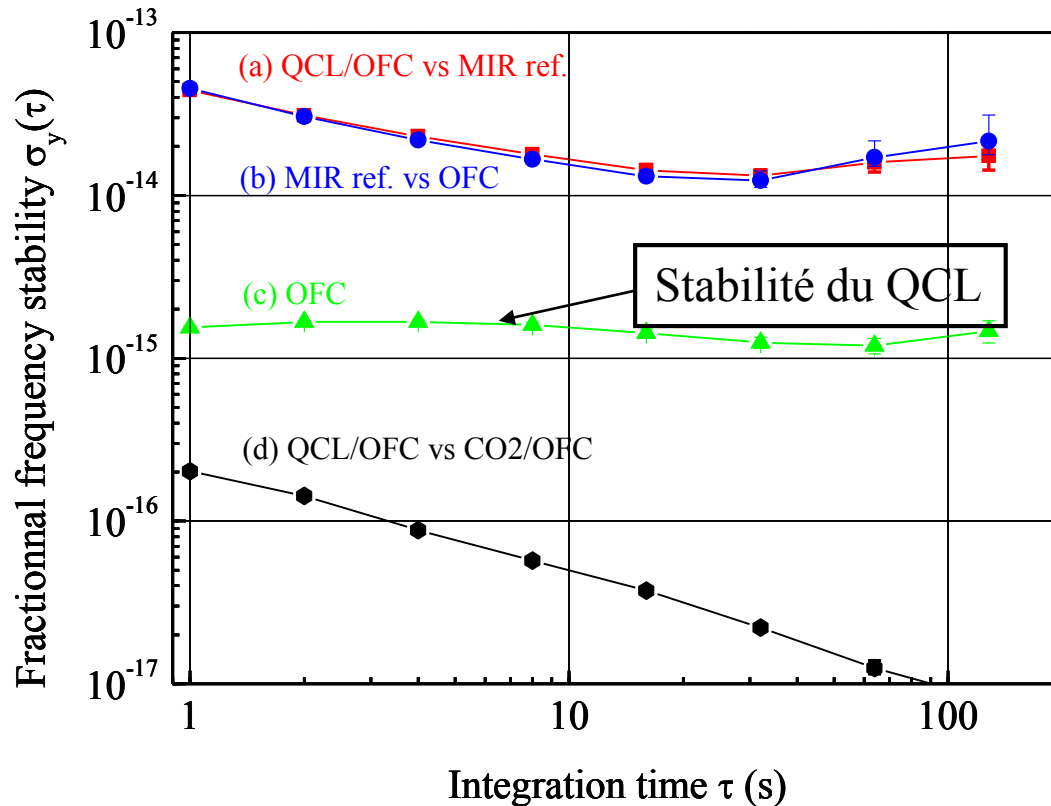


Stabilisation du QCL

- Asservissement de f_{rep}
- Somme de fréquence
 - Δ_1 : asserv. QCL
- MIR référence :
 - Laser CO₂ stab. OsO₄
 - Stabilité : $5 \cdot 10^{-14}$ à 1s
- Autres battements :
 - Δ_2 : mesure stab. QCL/MIR ref.
 - Δ_1' : mesure MIR ref.



Stabilité de fréquence - Ecart-type d'Allan



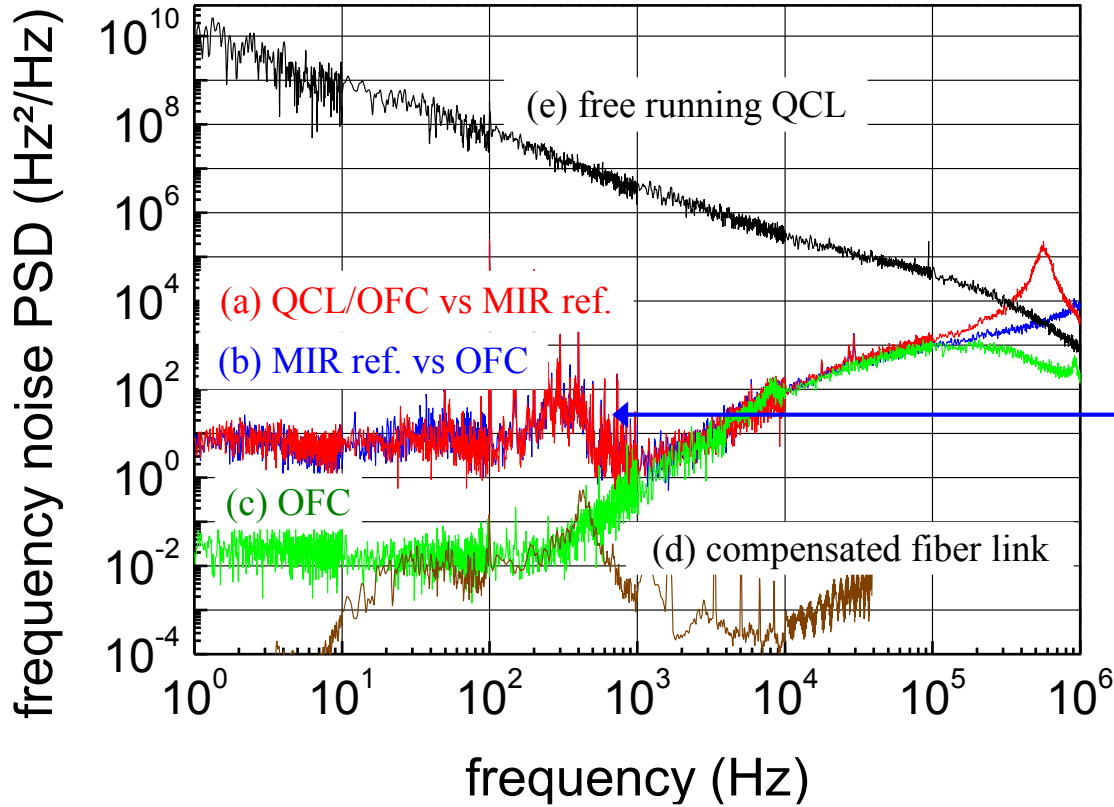
Stabilité de la référence MIR
=> limite haute de la stabilité du QCL
Chanteau et al, *New J. Phys.* (2013)

2nd laser US transmis via
même lien optique
=> mesure de la stabilité de l'OFC

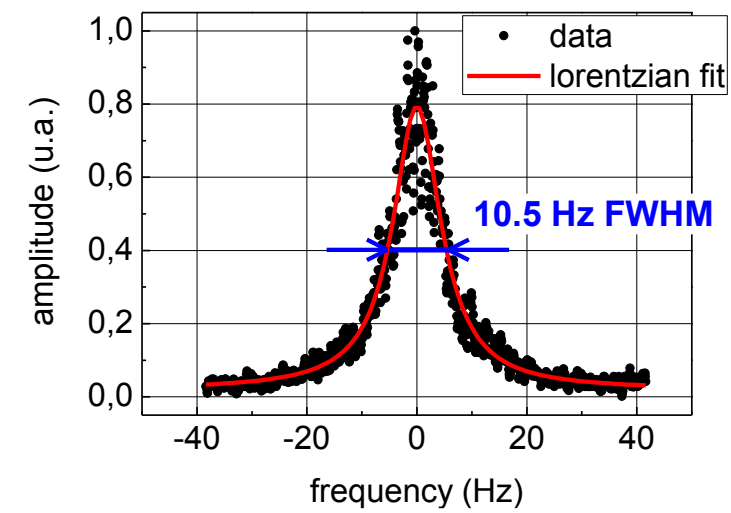
Asservissement simultané
d'un QCL et d'un laser CO₂
=> mesure du bruit apporté par PLL

Compteur en Λ , Gate time de 1s
Excepté (d) compteur Π

Stabilité de fréquence – PSD et largeur de raie



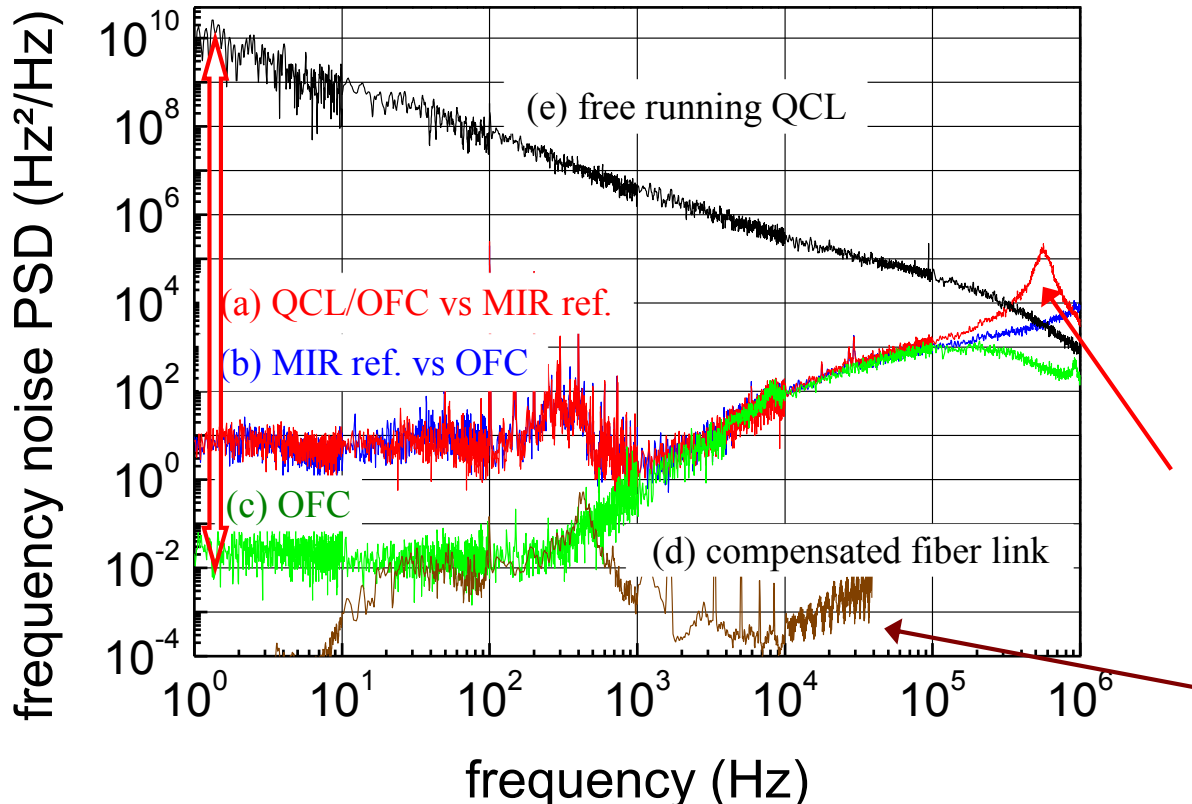
Battement QCL/MIR ref.



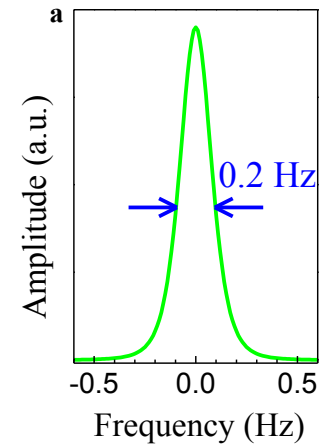
Dominé par la référence MIR

Stabilité de fréquence – PSD et largeur de raie

Réduction du bruit ~ 12 ordres de grandeur à 1 Hz



Largeur de raie QCL



BW ~ 500 kHz

SNR ~ 25 dB in 100 kHz RBW

Contribution mineure du lien optique

\Rightarrow Bruit de fréquence QCL $\sim 10^{-2}$ Hz^2/Hz entre 1 et 100 Hz

\Rightarrow Gain de ~ 2 ordres de grandeur par rapport à l'état de l'art 10 Hz $\Rightarrow 0,2$ Hz

Photographie du dispositif

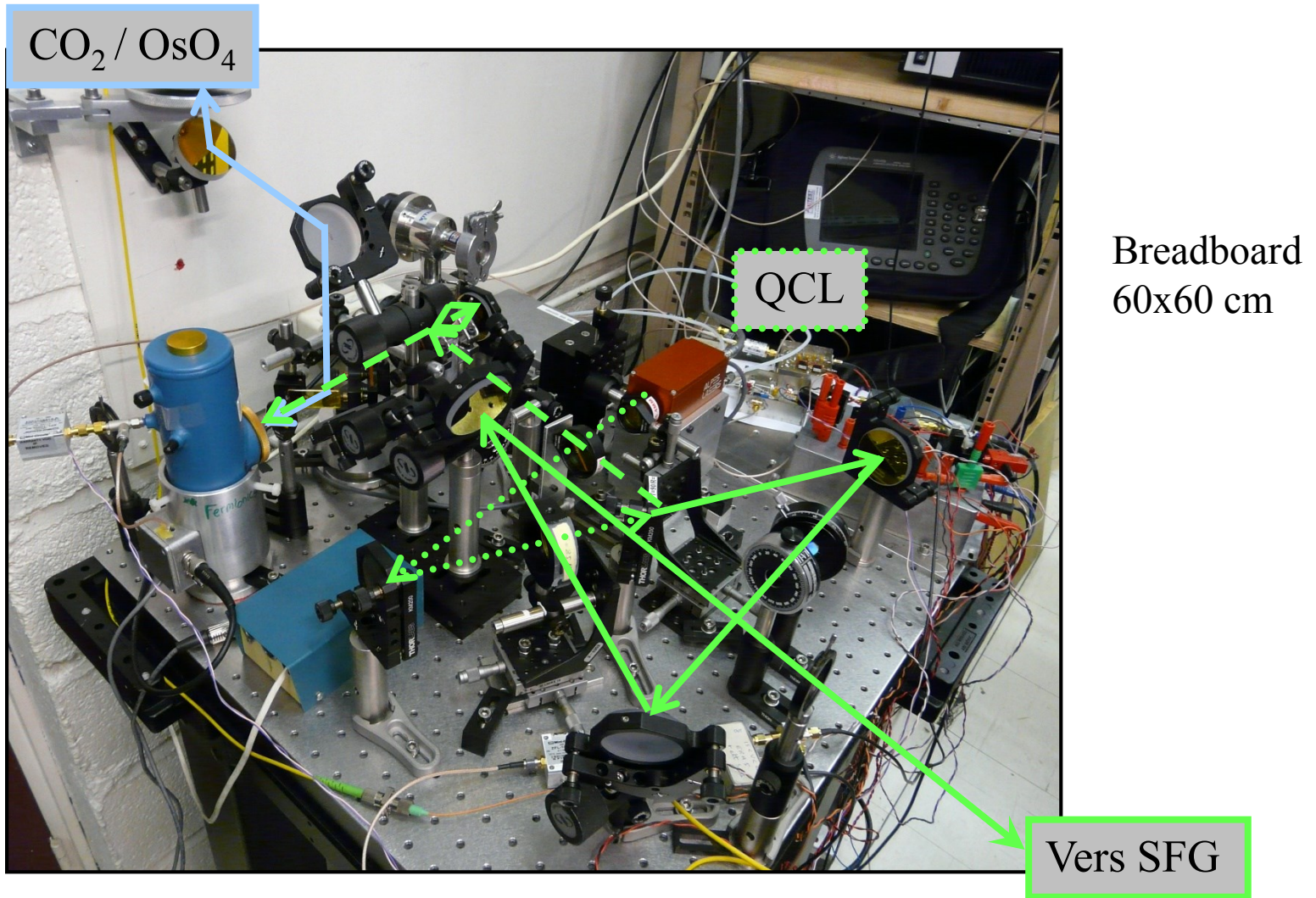
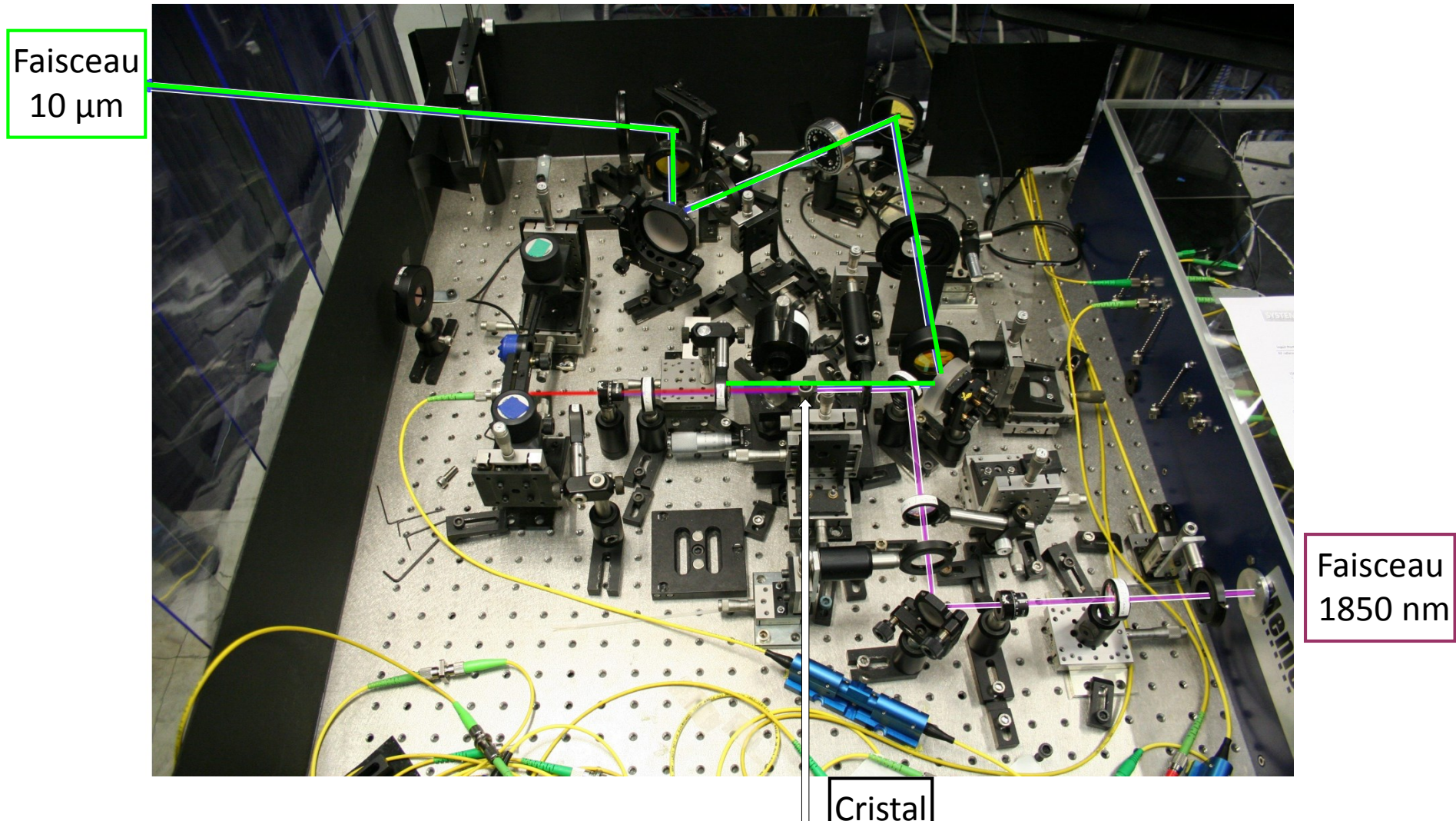
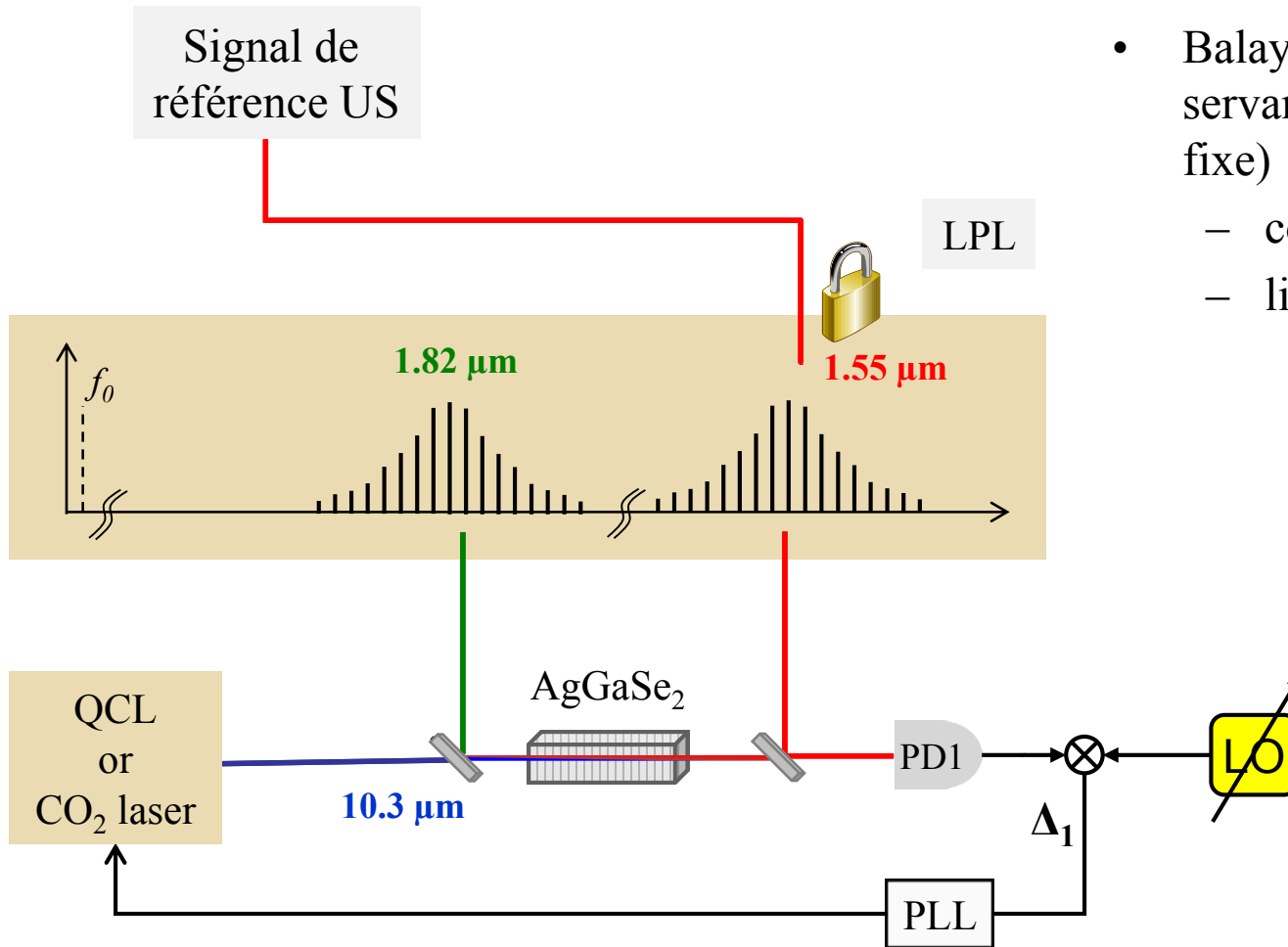


Schéma exp. : Somme de fréquence

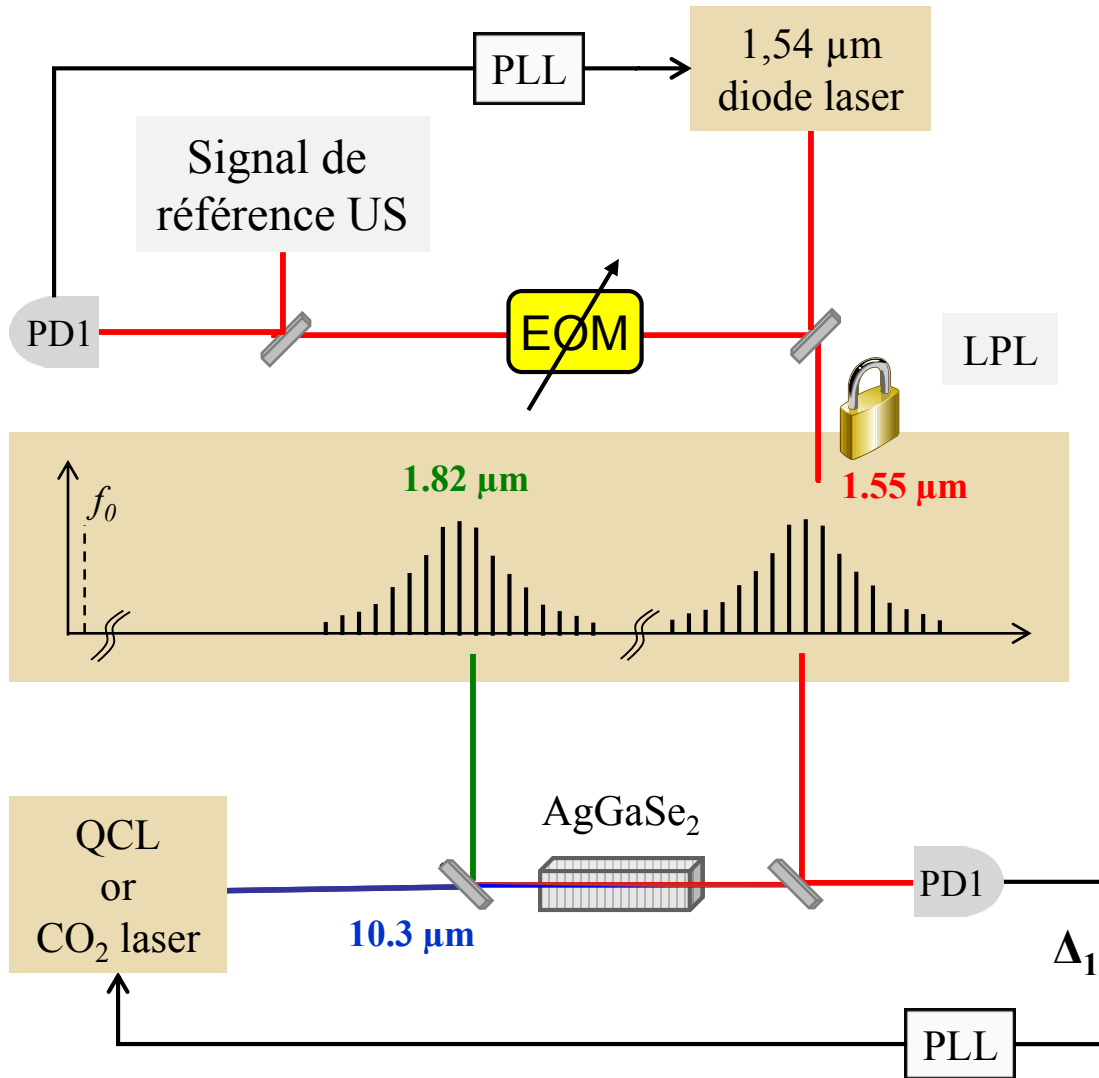


Balayage en fréquence du QCL



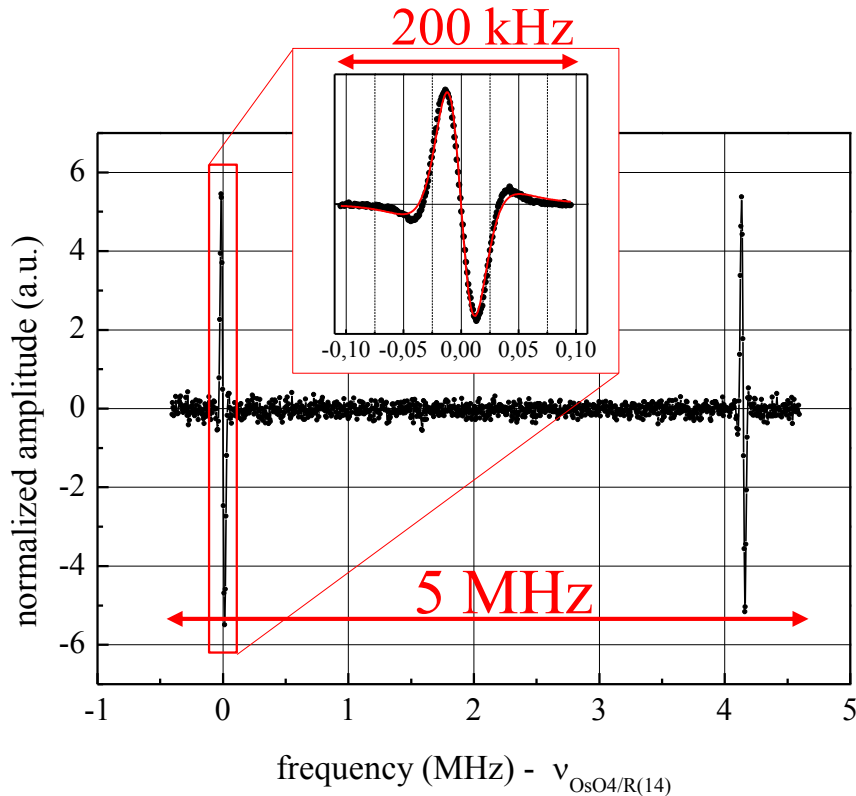
- Balayage du synthétiseur servant à locker le QCL (PLL fixe)
 - continu ~ 100 MHz
 - limité par $f_{\text{rep}}/2$ (125 MHz)

Balayage en fréquence du QCL



- Balayage du synthétiseur servant à locker le QCL (PLL fixe)
 - continu ~ 100 MHz
 - limité par $f_{\text{rep}}/2$ (125 MHz)
- Balayage de la réf à 1,54 μm
 - Asservissement d'une bande latérale de l'EOM
 - \Rightarrow Balayage de la réf à 1,54 μm et de f_{rep}
 - \Rightarrow à priori ≥ 1 GHz à 10 μm (6 GHz à 1,5 μm)

Spectroscopie MIR ultra haute résolution



$$\text{LO} = \pm (\nu_{\text{SYRTE}} - N f_{\text{rep}}) \quad N \sim 780\,000$$

$$\Delta = \pm (n f_{\text{rep}} - \nu_{\text{QCL}}) \quad n \sim 120\,000$$

Après levée des ambiguïtés sur les signes et valeurs de n et N

$$\nu_{\text{QCL}} = \left[\frac{n}{N} (\nu_{\text{SYRTE}} \pm \text{LO}) \pm \Delta \right]$$

⇒ Exactitude 10^{-14} à 100 s H-maser
 ⇒ mesure du centre de raie avec exactitude $\sim 8 \cdot 10^{-13}$ (limitée par effets systématiques)

Table 1 | Absolute frequencies of five OsO₄ absorption lines in the vicinity of the R(14) CO₂ laser line.

OsO ₄ lines in the vicinity of the CO ₂ R(14) laser line at 10.3 μm	Frequency shift from $\nu_{\text{OsO}_4/\text{R}(14)}$ calculated from refs 39 and 41 (kHz)	Frequency shift from $\nu_{\text{OsO}_4/\text{R}(14)}$ measured in this work (kHz)
¹⁹⁰ OsO ₄ reference line (unassigned)	0.000 (40)	-0.009 (22)
Unreported line	-	+4,147.399 (23)
¹⁹⁰ OsO ₄ , R(46)A ₁ ⁻ (-)	+101,726.83 (5)	+101,726.821 (32)
Unreported line	-	+123,467.401 (32)
Unreported line	-	+204,269.162 (33)

I The frequencies are given with respect to the OsO₄/CO₂-R(14) reference line frequency, $\nu_{\text{OsO}_4/\text{R}(14)} = 29.137,747,033,333$ THz, reported in ref. 39. In the second column we report the absolute frequencies calculated from refs 39 and 41 with 1 σ uncertainty. The third column displays the results of this work, where the uncertainty is the standard uncertainty of the mean. The R(46)A₁⁻(-) line has previously been recorded at lower pressure⁴⁰. Our measurement is thus expected to be pressure-shifted by approximately +10 Hz (ref. 26).

Conclusions

- Transfert de stabilité et d'exactitude de fréquence du proche vers moyen IR
 - Cavit  US 1,54 μm , standards primaires, lien optique de 43 km, 2 peignes de fr quence, lasers moyen IR
- Stabilit  $2 \cdot 10^{-15}$   1s ; largeur de raie du QCL $\sim 0,2$ Hz
- Spectroscopie   tr s haute r solution
 - Exactitude $\sim 10^{-12}$ (limit e par effets syst matiques OsO_4) sinon 10^{-14}
- Adaptable sur tout le MIR (3-20 μm)
 - Actuellement : QCL 200 GHz, dispositif (cristal et peigne) 9-11 μm
- Applications : mesures de pr cision sur les mol cules
 - tests de violation de parit ,  tudes atmosph riques (CO_2 , H_2O , $\text{O}_3 \dots$)