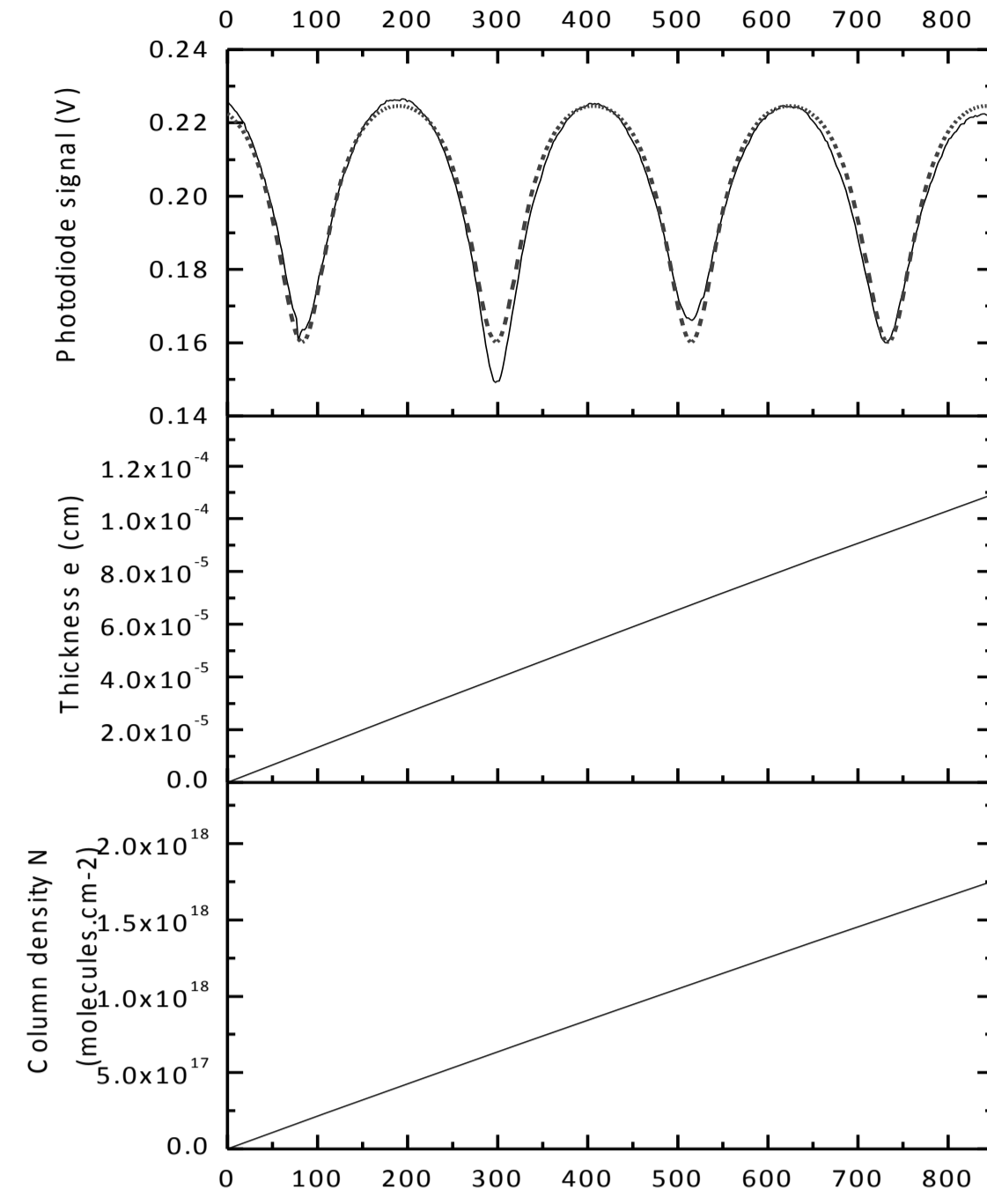
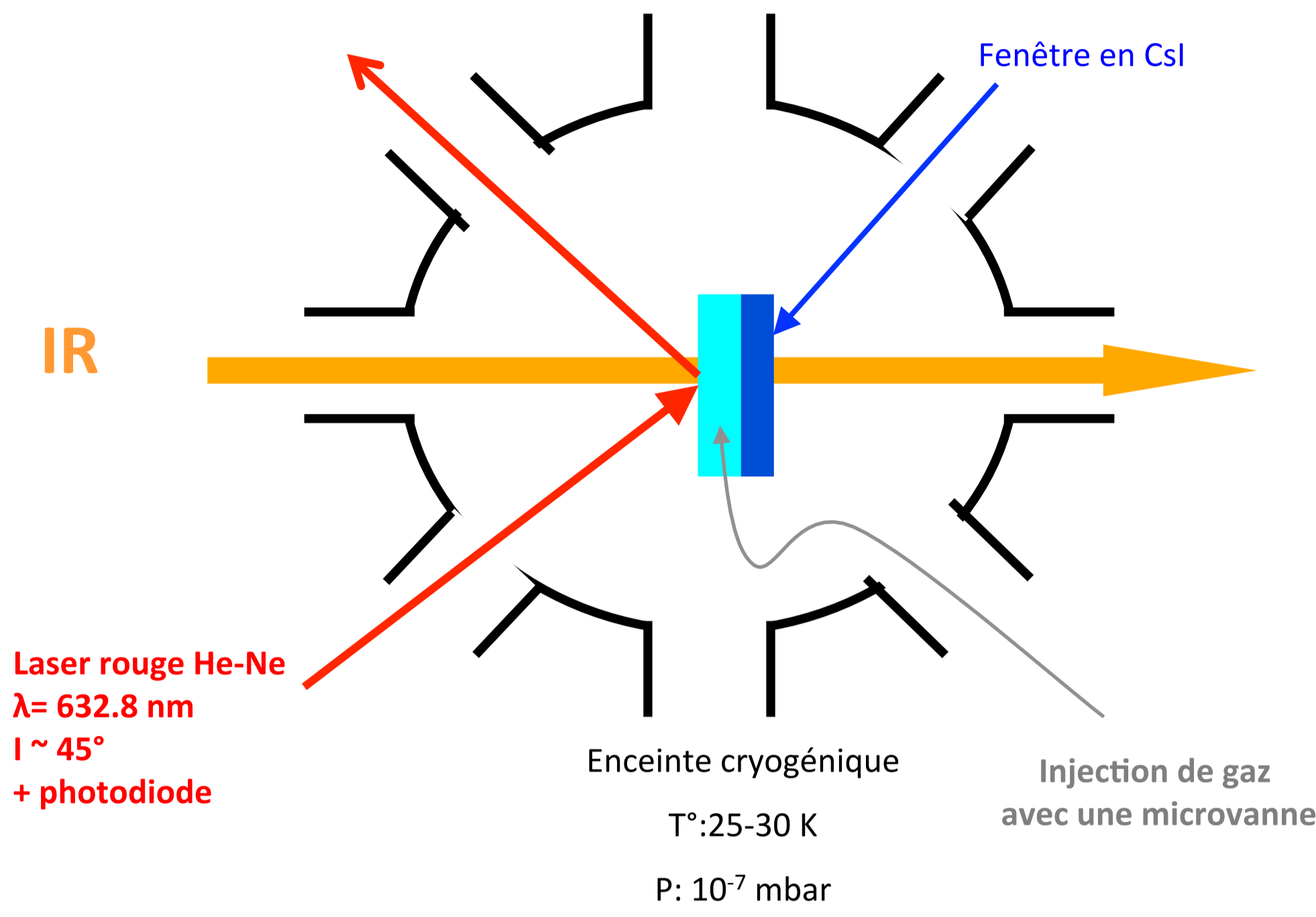


Contexte et objectifs: Les spectres infrarouges acquis grâce aux télescopes en orbite, ISO et Spitzer notamment, ont révélé la présence de molécules comme H₂O, CO, CO₂, CH₃OH, NH₃, CH₄, HCOOH et H₂CO à l'état condensé sur les grains présents dans l'environnement des étoiles naissantes (YSO : Young Stellar Object). L'objectif principal de ce travail est de quantifier la densité de colonne de ces molécules pures. Pour cela on a besoin de mesurer la section efficace intégrée notée A (cm.molécules⁻¹). Dans le domaine infrarouge, la mesure expérimentale des sections efficaces intégrées fait intervenir des grandeurs intrinsèques comme la masse volumique (g.cm⁻³) et l'indice optique. Pour certaines bandes des molécules telles que H₂O, CO, CO₂, NH₃, CH₄, ces valeurs sont déjà présentes mais elles sont parfois douteuses parce que beaucoup d'approximations sont faites dans les calculs, notamment sur les valeurs des indices optiques et des masses volumiques. Plusieurs auteurs ont aussi fait des calculs relatifs des A à partir des valeurs de la littérature, multipliant ainsi les erreurs.

Matériels et méthodes: mesure des sections efficaces intégrées

OREGOC: ORigine et Evolution des Glaces et composés Organiques Cométaires



Calcul sections efficaces intégrées A (cm.molécules⁻¹)

$$e = k * \frac{\lambda}{2n * \sqrt{1 - \left(\frac{\sin(i)}{n}\right)^2}}$$

e: épaisseur (cm)
k: nombre d'interférence
n: indice optique de la glace
i: angle formé par le laser et la surface du dépôt
λ: longueur d'onde du laser (nm)

$$N = \frac{e * \rho * Na}{M}$$

ρ: densité de la glace considérée (g.cm⁻³)
M: Masse molaire de la glace (g.mol⁻¹)
Na: nombre d'Avogadro (molécules⁻¹)

$$A = \frac{\int \log\left(\frac{I_0}{I}\right) d\theta}{N}$$

A: Section efficace intégrée (cm.molécules⁻¹)
∫ abs(θ) dθ: intégrale de la bande IR considérée (cm⁻¹)
N: densité de colonne (molécules.cm⁻²)

La section efficace intégrée est la pente de la droite représentant l'intégrale d'une bande en fonction de la densité de colonne

Interférences, épaisseur et densité de colonne en fonction du temps correspondant au dépôt de CH₄ solide avec une vitesse de 2.25*10¹⁵ molécule.cm⁻².s⁻¹.

Résultats: sections efficaces intégrées mesurées, comparaison avec la littérature

Cas du CH₄ pur à l'état condensé

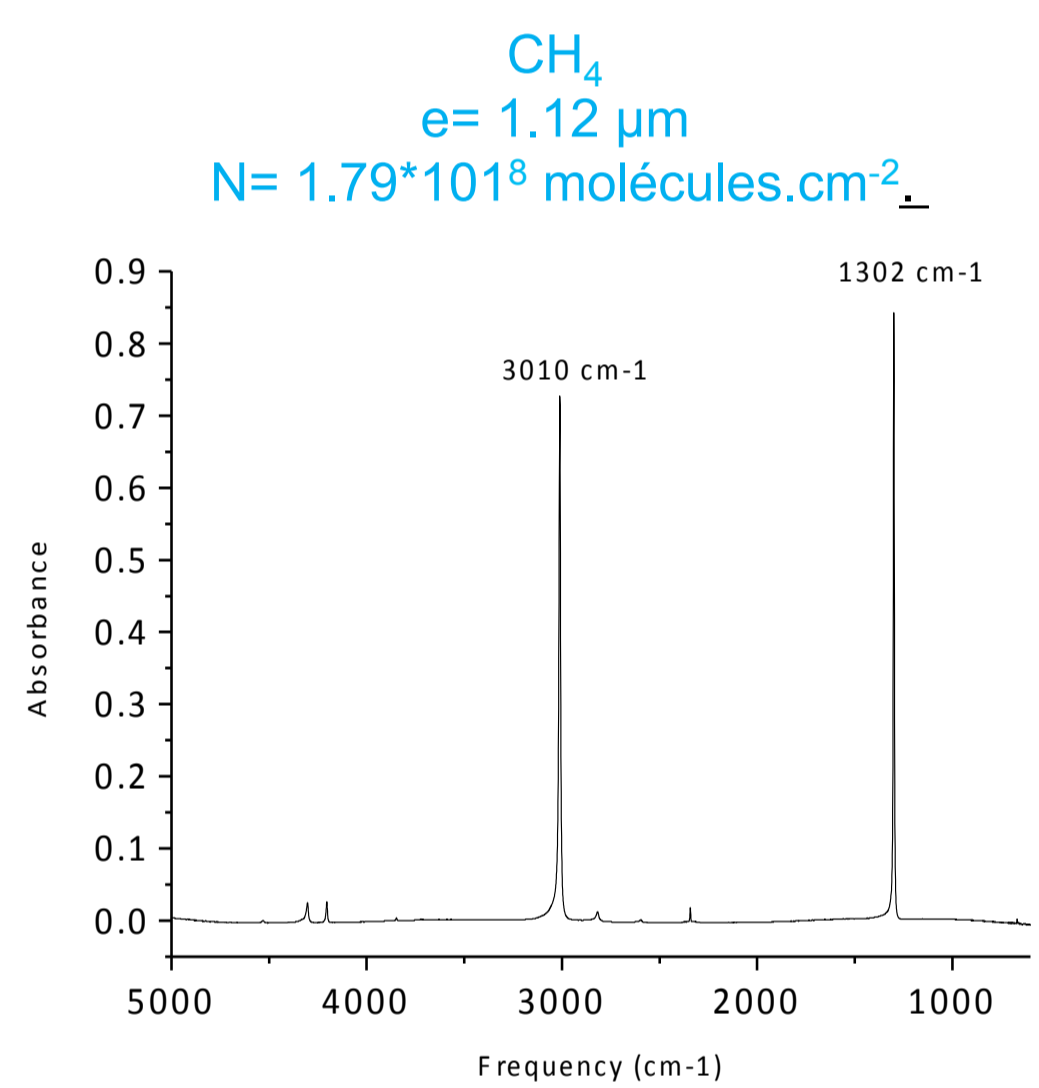
References	Wavelength (nm)	n	Method to determine n	T° (K)
R.Luna et al. 2012	He-Ne laser: 632.8	1.30 +/- 0.01	Double laser interferometry	14
Satorre et al. 2008	He-Ne laser: 632.8	1.30	Double laser interferometry	10 to 35
Brunetto et al. 2008	He-Ne laser: 632.8	1.329	Double laser interferometry	16
Roux et al. 1980	He-Ne laser: 632.8	1.35	Double laser interferometry	20

References	d (g.cm ⁻³)	Method to determine d	T° (K)
R.Luna et al. 2012	0.47 +/- 0.01	Quartz microbalance	14
Satorre et al. 2008	0.47	Quartz microbalance	10 to 35
Roux et al. 1980	0.426	Quartz microbalance	20
Brunetto et al. 2008	0.403	Calculations	16
Boogert et al. 1997	0.52	From Landolt-Börnstein 1971	

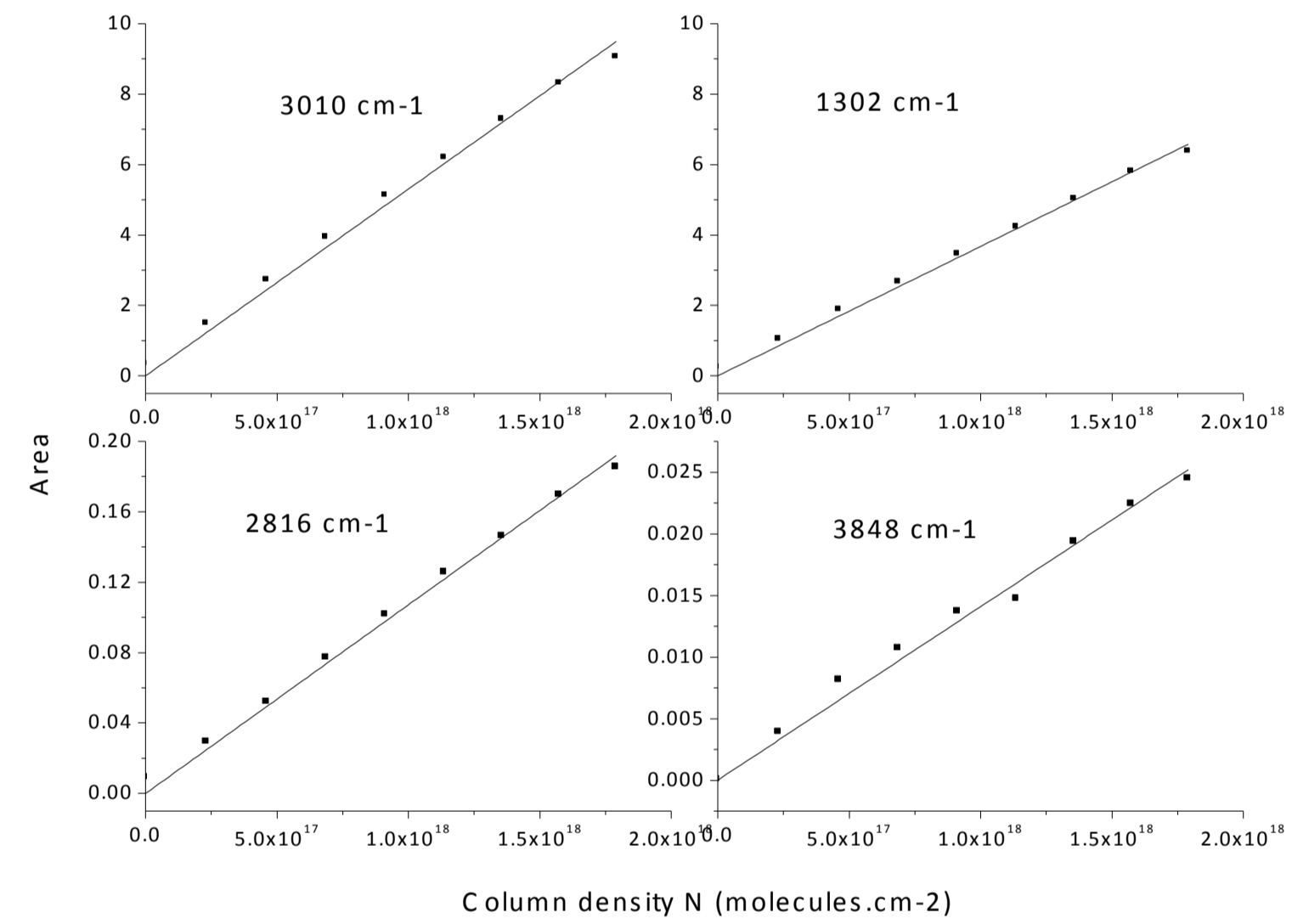
Revue (mesures absolues et relatives) des indices de réfraction n (en haut à gauche) et des masses volumiques ρ en g.cm⁻³ (en bas à gauche) disponibles dans la littérature pour le CH₄ pur à l'état condensé

Position cm ⁻¹	Label	Mode	n used in the literature	ρ used in the literature (g.cm ⁻³)	A-value (ln) found in the literature (cm.molécule ⁻¹)	Corrected A (A') with ρ = 0.45 g.cm ⁻³ (cm.molécule ⁻¹)	Source
1302	v4	deformation (CH)	1.33	1	6.10E-18	1.36E-17	D'Hendecourt et al. 1986
			1.33 +/- 0.03	0.45 +/- 0.03	3.80E-18	8.44E-18	Hudgins et al. 1993
			1.329	0.403	7.30E-18	8.44E-18	Boogert et al. 1997
			1.33 +/- 0.03	0.45 +/- 0.03	6.40E-18	7.40E-18	Mulas et al. 1998
2816	v2+v4	combination	1.33 +/- 0.03	0.45 +/- 0.03	8.10E-18 +/- 9%	8.10E-18 +/- 9%	This work
3010	v3	vS (CH)	1.33	1	2.76E-19	2.47E-19	Brunetto et al. 2008
3848	v1+v4	combination	1.33 +/- 0.03	0.45 +/- 0.03	1.12E-17 +/- 11%	1.12E-17 +/- 11%	D'Hendecourt et al. 1986
1.329			0.403	6.40E-18	1.42E-17	Hudgins et al. 1993	
1.33 +/- 0.03			0.45 +/- 0.03	5.70E-18	1.27E-17	Mulas et al. 1998	
4202	v3+v4	combination	1.33 +/- 0.03	0.45 +/- 0.03	9.50E-18	1.10E-17	This work
1.329			0.403	3.40E-18	1.42E-17	D'Hendecourt et al. 1986	
4301	v2+v3	combination	1.33 +/- 0.03	0.45 +/- 0.03	1.60E-18	1.85E-18	Hudgins et al. 1993
1.329			0.403	3.59E-19	3.22E-19	Mulas et al. 1998	
4529	v2+v3	combination	1.33 +/- 0.03	0.45 +/- 0.03	3.53E-19 +/- 10%	3.53E-19 +/- 10%	This work
1.329			0.403	3.40E-18	3.93E-18	Gerakines et al. 2005	
			1.33 +/- 0.03	0.45 +/- 0.03	6.85E-19	6.13E-19	Brunetto et al. 2008
			1.33 +/- 0.03	0.45 +/- 0.03	4.87E-19 +/- 10%	4.87E-19 +/- 10%	This work
			1.329	0.403	4.50E-19	5.20E-19	Gerakines et al. 2005
			1.33 +/- 0.03	0.45 +/- 0.03	6.52E-20	5.84E-20	Brunetto et al. 2008
			1.33 +/- 0.03	0.45 +/- 0.03	5.64E-20 +/- 11%	5.64E-20 +/- 11%	This work

Attribution des bandes IR, valeurs des sections efficaces intégrées mesurées A pour CH₄ solide, pur et revue des A disponibles dans la littérature. Ces A ont été corrigées de façon à ce que les valeurs soient basées sur la même masse volumique choisie dans ce travail (ρ(CH₄)=0.45 g.cm⁻³ ici) pour faciliter la comparaison en utilisant la relation A'=A*(ρ/ρ_{lit}). A' correspond à la valeur corrigée avec ρ. A est la valeur directement trouvée dans la littérature en utilisant ρ.

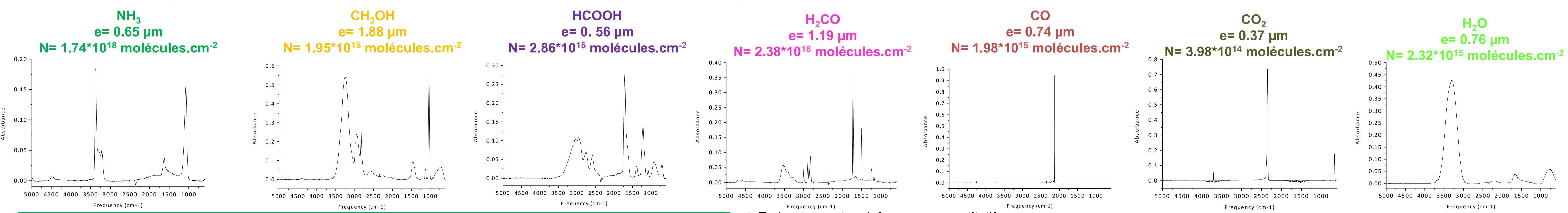


Spectre IR de CH₄ pure à l'état condensé à -25K.



Intégrales des principales bandes IR de CH₄ en fonction de la densité de colonne (molécules.cm⁻²). La section efficace intégrée est la pente de ces droites.

Quelques autres résultats: des spectres IR quantitatifs, une revue des n et ρ ainsi qu'une comparaison des A mesurées avec celles trouvées dans la littérature ont été faits pour chacune des molécules



Position cm ⁻¹	Label	Mode	n used in the literature	ρ used in the literature (g.cm ⁻³)	A-value (ln) found in the literature (cm.molécule ⁻¹)	Corrected A (A') with ρ = 1.37 g.cm ⁻³ (cm.molécule ⁻¹)	Source
1069	v2	"umbrella"	1.37 +/- 0.02	0.76 +/- 0.2	1.70E-17	2.24E-17	D'Hendecourt et al. 1986
1630	v4	deformation (NH)	1.37 +/- 0.02	0.76 +/- 0.2	4.70E-18	6.18E-18	This work
3202			1.37 +/- 0.02	0.76 +/- 0.2	1.69E-18 +/- 29%	1.69E-18 +/- 29%	Sandford et al. 1993
3376	v1, v3	NH-stretch	1.37 +/- 0.02	0.76 +/- 0.2	4.71E-18 +/- 29%	4.71E-18 +/- 29%	This work
			1	1	1.10E-17	1.45E-17	D'Hendecourt et al. 1986
			1	1	1.40E-17	1.064E-17	Dartois et al. 2001
			1.37 +/- 0.02	0.76 +/- 0.2	1.21E-17 +/- 29%	1.21E-17 +/- 29%	This work
					8.7E-19	1.21E-17 +/- 29%	Gerakines et al. 2005

En haut, spectres infrarouges quantitatifs acquis à 25K des 8 molécules solides pures étudiées

Attribution des bandes IR et valeurs des sections efficaces intégrées mesurées pour le NH₃ (à gauche), HCOOH (en haut à droite) et H₂CO (en bas à droite).

Pour le NH₃, une revue des A de littérature est présentée. Ces A ont été corrigées de façon à ce que les valeurs soient basées sur la même masse volumique choisie dans ce travail (ρ(NH₃)=1.37 kg.m⁻³) pour faciliter la comparaison en utilisant la relation A'=A*(ρ/ρ_{lit}). A' correspond à la valeur corrigée avec ρ. A est la valeur directement trouvée dans la littérature avec ρ.

Pour HCOOH et H₂CO purs à l'état condensé, les tableaux de droites présentent les premières valeurs de sections efficaces intégrées.

Position cm ⁻¹	Label	Mode	Average A (log) cm.molécule ⁻¹	Average A (ln) cm.molécule ⁻¹	Error (%)
929	v5	vB(OH)	2.79E-17	6.43E-17	34
1074	v8	vB(CH)	1.32E-01	3.05E-01	31
1216	v6	vS(C-O)	1.28E-17	2.94E-17	33
1384	v5 and v4	vB(OH) and vB(CH)	1.60E-18	3.69E-18	34
1708	v3	vS(C-O)	2.36E-17	5.43E-17	33
2586	v1	vS(OH)	7.37E-18	1.70E-17	35
2757	v1	vS(OH)	1.08E-17	2.48E-17	37
2939	v2	vS(CH)	4.33E-17	9.98E-17	34

Position cm ⁻¹	Label	Mode	Average A (log) cm.molécule ⁻¹	Average A (ln) cm.molécule ⁻¹	Error (%)
1178	v4	CH2 out-of-plane bend	1.94E-19	4.48E-19	46
1247	v5	CH2 in-plane bend	3.94E-19	9.07E-19	46
1500	v3	CH2 scissor	1.38E-18	3.18E-18	46
1725	v2	VS(C-O)	4.40E-18	1.01E-17	45
2829	v5	VS(CH)	1.28E-18	2.94E-18	45
2891		VS(CH)	8.53E-19	1.96E-18	46
2997			5.45E-19	1.26E-18	46

Comparaison avec la littérature

- Premières valeurs de sections efficaces intégrées A pour le HCOOH et H₂CO purs à l'état condensé
- CO, CH₃OH, NH₃ et CH₄: A mesurées dans ce travail concordent (aux incertitudes près) avec celles disponibles dans la littérature
- H₂O: A mesurées dans ce travail plus faibles: glace d'eau poreuse → Détermination quantitative de la porosité
- CO₂: A plus faibles → pas d'explication claire pour l'instant.

Conclusion

- Validation d'une méthode de mesure de la section efficace intégrée de n'importe quelle molécule d'intérêt astrophysique
- Spectre infrarouge de référence quantitatif pour identifier des molécules

Perspectives:

- Avec la connaissance des sections efficaces intégrées A: contrôle de la préparation des mélanges de glaces dans des proportions choisies. Ces mélanges vont ensuite être photolysés puis réchauffés pour représenter le plus fidèlement possible les molécules organiques de haut poids moléculaires potentiellement présentes dans les noyaux cométaires (Cf schéma à droite).

