

"MESOSCOPIC GAS" TRANSITIONS OPTIQUES DANS DES VAPEURS CONFINÉES DE FAÇON MESOSCOPIQUE 08-BLAN-0031



Daniel Bloch,
Isabelle Maurin, Athanasios Laliotis,
Martial Ducloy, Marie-Pascale Gorza,
Doctorants : Philippe Ballin, Elias Moufarej,

Laboratoire de Physique des Lasers
UMR7538 du **CNRS** et
Université Paris13-Sorbonne Paris-Cité
+ *collaborations Bordeaux, Uruguay, Russie*

Journées Nationales Nanosciences et
Nanotechnologies 2012

Optique et confinement mésoscopique d'une vapeur

PLAN

- "Vapeur mésoscopique" : libre parcours , confinement , λ_{opt}
- Résultats 1D avant ANR : **sub-Doppler**, et rétrécissement Dicke
- L'état de l'art 2D et 3D qui ne vise pas le sub-Doppler
- Notre approche avec des interstices d'opales :
 - → *une limitation physico-chimique Cs/opale épaisse*
 - → *une approche Langmuir-Blodgett qui a porté ses fruits*
 - → *réflexion à l'interface vs. étude en diffusion*
- Verre poreux avec synthèse "home-made" (ECOS-Sud)
- *"Impact"*

LPL-Paris13 CONFINEMENT 1D et sub-Doppler

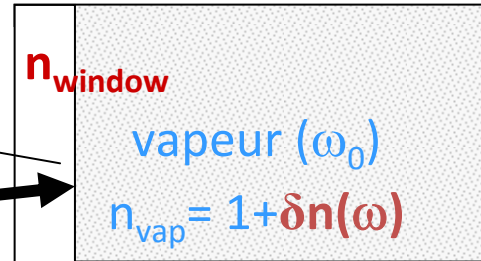
REFLEXION SELECTIVE

profondeur $\lambda/2 \pi \sim 100 \text{ nm}$

1990's (et 1982)

$$R_0 + \Delta R(\omega)$$

ω

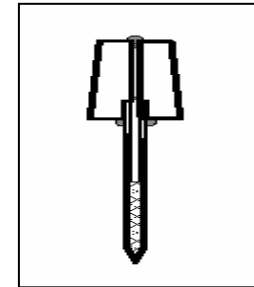


cellule mince 10-1000 μm (1995,...)

puis "extremely thin cell" (coopération/

Arménie 2001....)

épaisseur $\sim 20\text{--}....1000 \text{ nm}$



Problématique des **horloges** : réf. de fréquence (Cs, Rb, moléc.)

sp^{ie} **SR** : composante **sub-Doppler** (incidence **normale**)

→ sélection de vitesse // surface

(+ **FM** pour affiner par dérivation en fréquence du spectre)

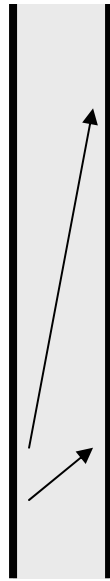
Cellule (très) mince + incidence **normale**

sélection de vitesse /transitoire + **Dicke 1D**

“Nanocellules” (production arménienne)

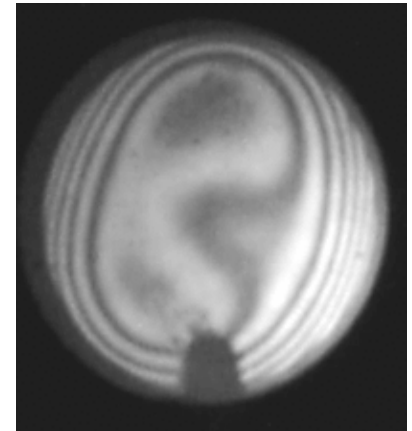


- fenêtres (YAG ou Saphir) séparées par un espaceur (nominal ~ 300 nm)
- très bonne planéité
- après évacuation : $\sim 20-1000$ nm
- *faible pression de Cs*



un temps d'interaction plus long
pour les atomes en vol parallèle à
la paroi (Briaudeau, 1996,....)
→ *sélection des vitesses "lentes"*

D. Sarkisyan et al., Opt. Comm. **200**, 201 (2001)



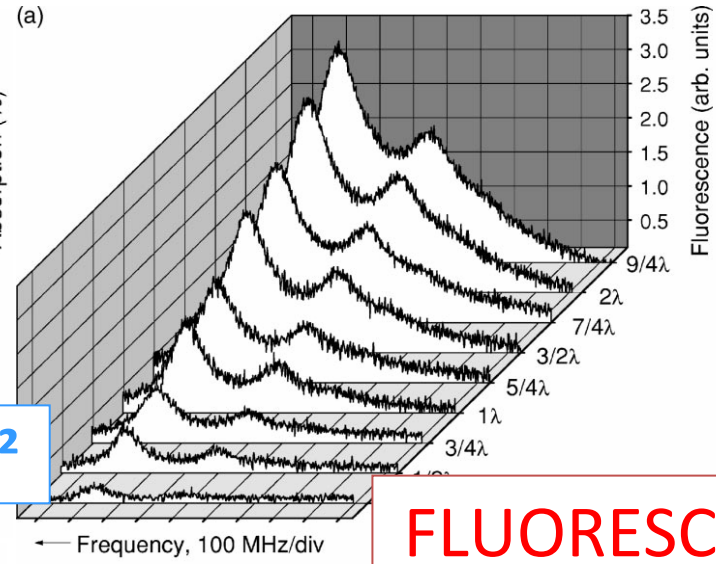
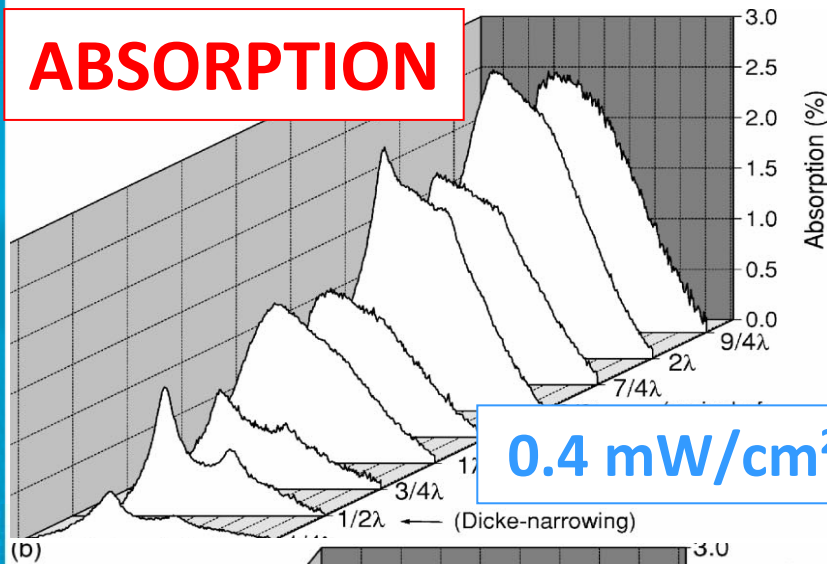
G. Dutier et al., EPL 2003

épaisseur locale :
 \sim un Fabry-Perot
précision ~ 5 nm

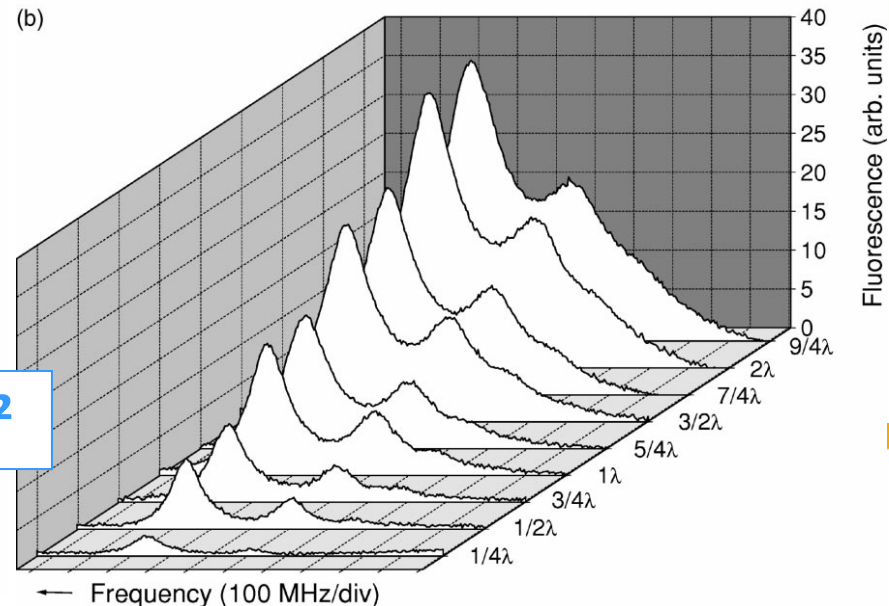
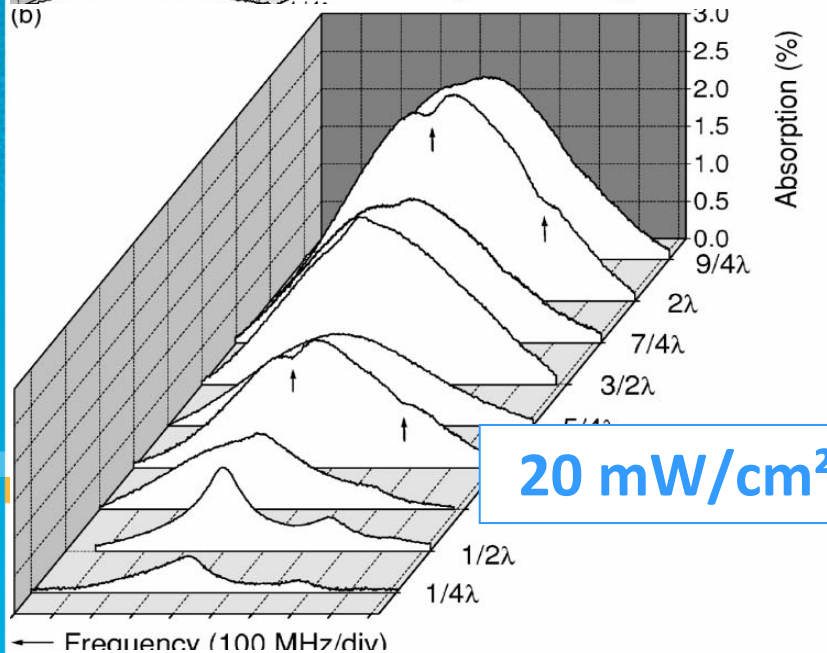
Rétrécissement Dicke 1D pour une épaisseur $\lambda/2$ ($3\lambda/2$)

processus cohérent (absorption), et **linéaire** PRA 69, 065802 (2004)

ABSORPTION

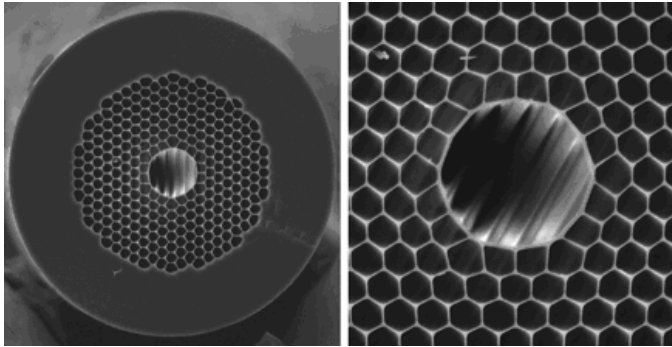


FLUORESCENCE



Spectroscopie de vapeur confinée : un état de l'art...

- NIST- 2004 : intégration microélectronique
→ horloge atomique réduite à $9,5\text{mm}^3$ ~ "grain de riz")
La technique reste macroscopique
- cellule "fibrée" (fibre creuse ou photonique) Bath 2005, Cornell 2007
favorable pour ONL (focalisation + guidage)
mais \varnothing : 10-20 μm Doppler non éliminé
- Milieu poreux Sienna 2006 pores ~ 7-30 nm
Light-Induced Atomic Desorption (LIAD) depuis les pores,
mais pas d'observation directe des atomes dans les pores
- Gaz moléculaire observé pour des pores ~ 100 nm Lund 2010
équivalence avec une longue cellule (diffusion de la lumière)
densité moléculaire élevée → collisions sous confinement,...



F. Benabid *et al* «Compact, stable and efficient all-fibre gas cells using **hollow-core photonic crystal fibres**», *Nature* **434**, 488 (2005)



T. Svensson *et al* «Disordered, Strongly Scattering **Porous Materials as Miniature Multipass Gas Cells**», *Phys. Rev. Lett.* **107**, 143901 (2011)

Un rétrécissement Dicke en 3D ?

The Effect of Collisions upon the Doppler Width of Spectral Lines

R. H. DICKE

Palmer Physical Laboratory, Princeton University, Princeton, New Jersey

(Received September 17, 1952)

Quantum mechanically the Doppler effect results from the recoil momentum changing the translational energy of the radiating atom. The assumption that the recoil momentum is given to the radiating atom is shown to be incorrect if collisions are taking place. If the collisions do not cause broadening by affecting the internal state of the radiator, they result in a substantial narrowing of the Doppler broadened line.

- Dicke 1953 : mouvement atomique $\leq \lambda \rightarrow$ pas d'effet Doppler
l'effet Doppler comme un déphasage champ/réponse atomique du dipôle \rightarrow
si $\leq \lambda/2$, déphasage inférieur à π
- **Observation standard en micro-ondes, pas en optique**
- Confinement collisionnel : **paroi vs. collisions atomiques?**

Réalisation d'un confinement 3D: interstices d'opale

- **Opale** : empilement " **cristallin** " de **sphères monodisperses**
chimie douce et auto-organisée pour des cristaux photoniques
- Interstices : structure selon empilement (HC, CFC, défauts, ...) $\sim d/2$
- Des sphères monodisperses ? **verre** : 0,1 - qqes μm
Fabrication : modalités diverses...
- **Compatibilité verre/alcalins** : en principe OK
- Opale épaisse ...
des difficultés inattendues
cellule à **vapeur de Cs**

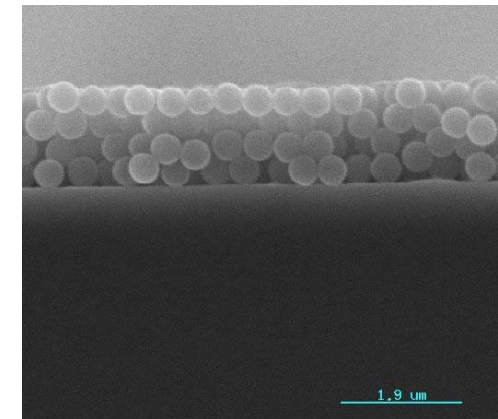
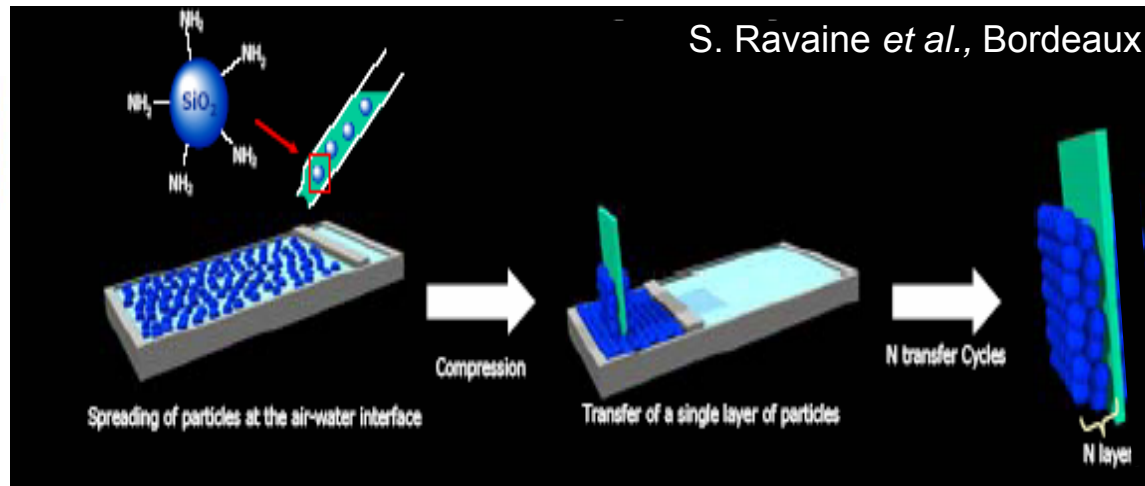


Coloration : signature d'une formation d'agrégats

Une cellule avec une opale couche-à-couche

préparation Langmuir-Blodgett par S Ravaine *et al.*, CRPP Bordeaux

- **Stratégie** : comprendre les problèmes agression chimique/ adsorption,...
- Surchauffage + désorption en volume facile
→ blancheur retrouvée de l'opale
- En réflexion, on peut **s'affranchir du signal volumique** de la vapeur !

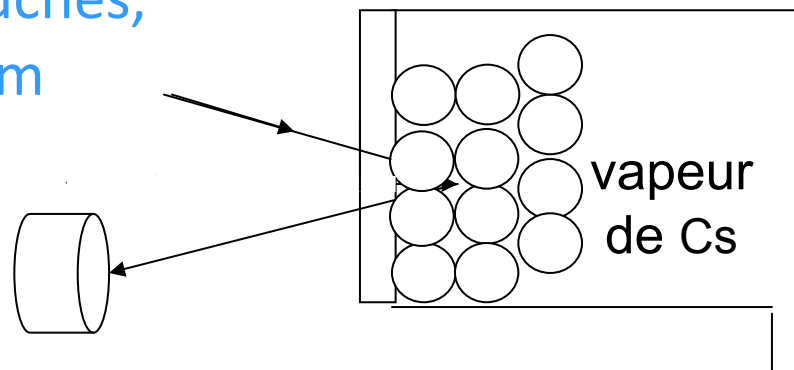


P.Massé, thèse
Bordeaux1 (2007)

cf. aussi "Images de la Physique 2011" CNRS-INP

Réflexion à l'interface avec l'opale

opale : 20 couches,
diam. $1 \mu\text{m}$



- **Réflexion résonnante observable !**

et **sub-Doppler** (en FM) **pour faible incidence**

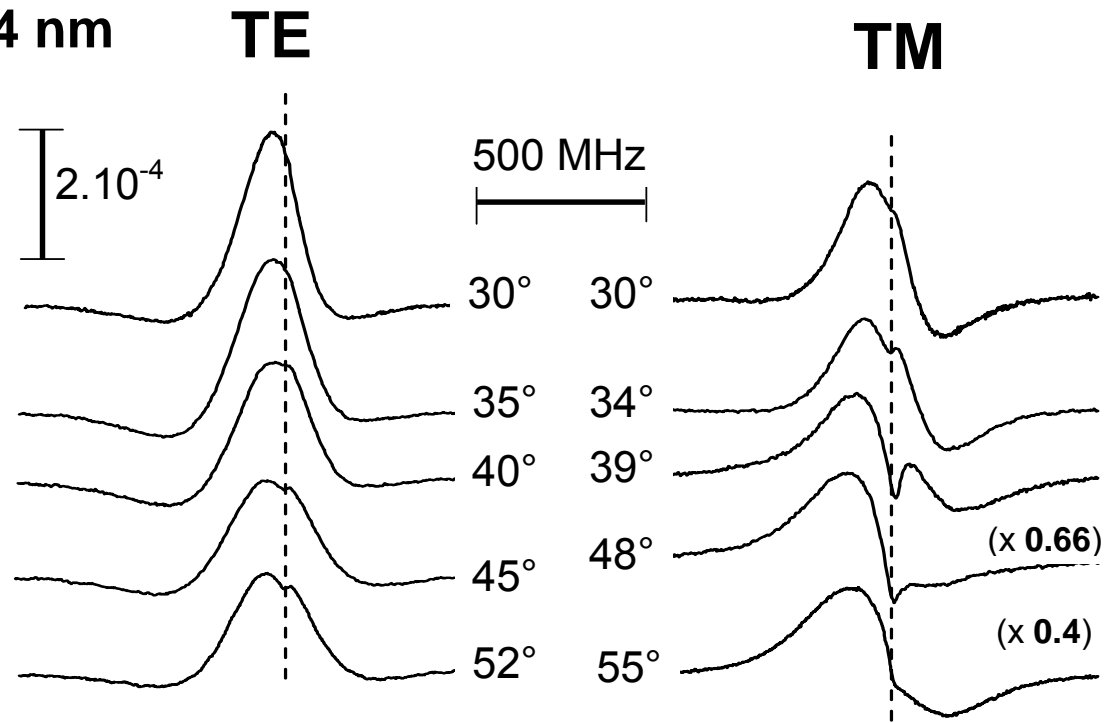
- Lieu précis de la réflexion ? : **une des interfaces,**
: **ou un effet des couches en volume**
: **réflexion sur une surface corruguée**

$$R_{\text{window/opal/vacuum}} \approx R_{\text{air/window}} ?$$

10 couches et 20 couches même comportement

Propagation de la lumière dans l'opale ...problème de micro / nano-optique

Cs D₁ 894 nm



Elargissement avec l'angle d'incidence :

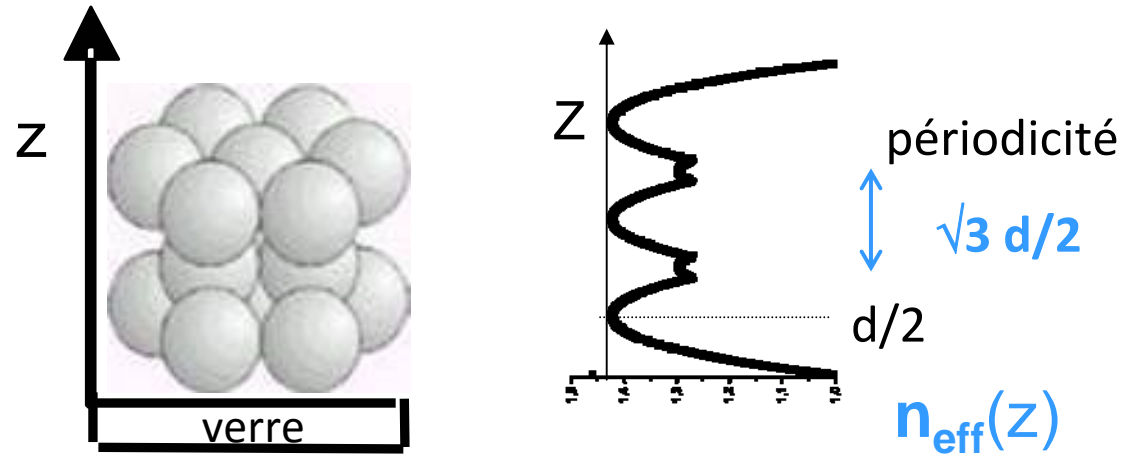
un effet "cellule mince", ou 1^{ère} couche ?

+ structure sub-Doppler (FM) pour des incidences "pseudo-Brewster"

Différence TE / TM → effet de propagation dans l'opale

Propagation nano-optique avec une opale $\emptyset \sim \lambda$?

(Transm., réfl., diffusion de Bragg..)



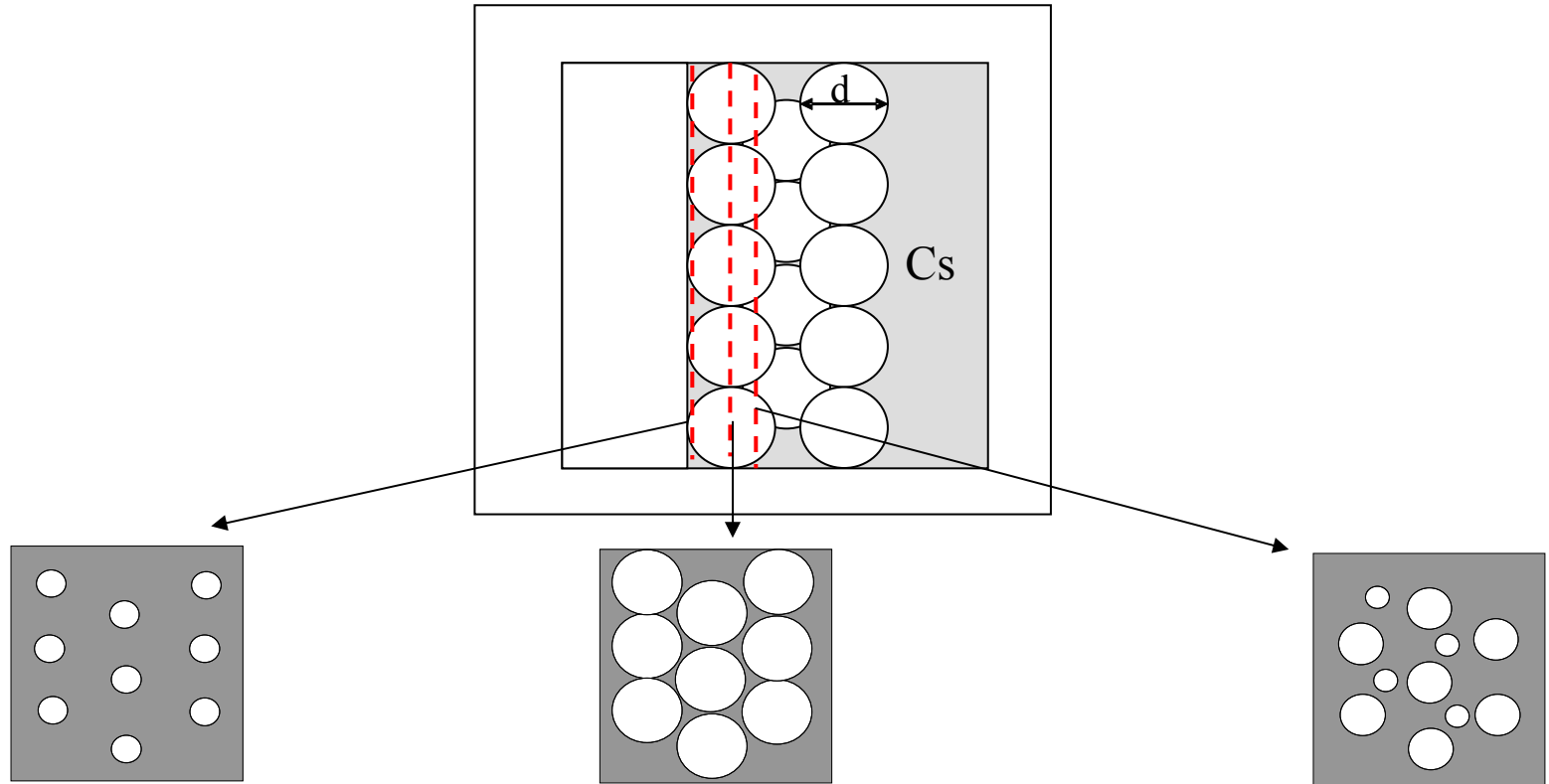
$$n_{eff} = \sqrt{f \varepsilon_{SiO_2} + (1-f) \varepsilon_{air}}$$

Un modèle par couches avec "indice effectif"

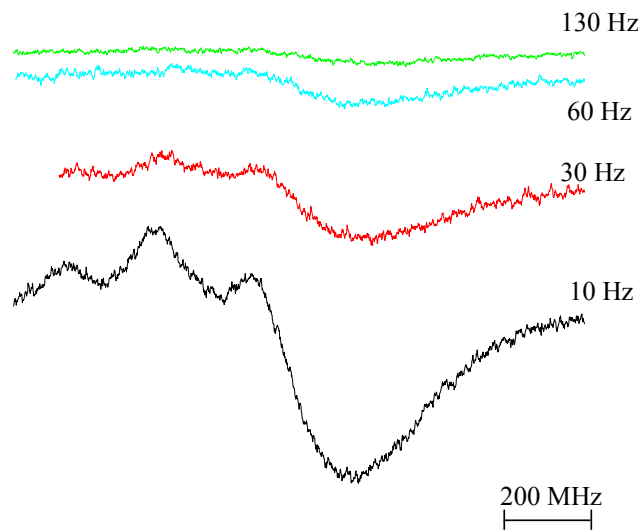
ET des expériences d'optique de caractérisation des opales

Complément : des expériences POMPE-SONDE

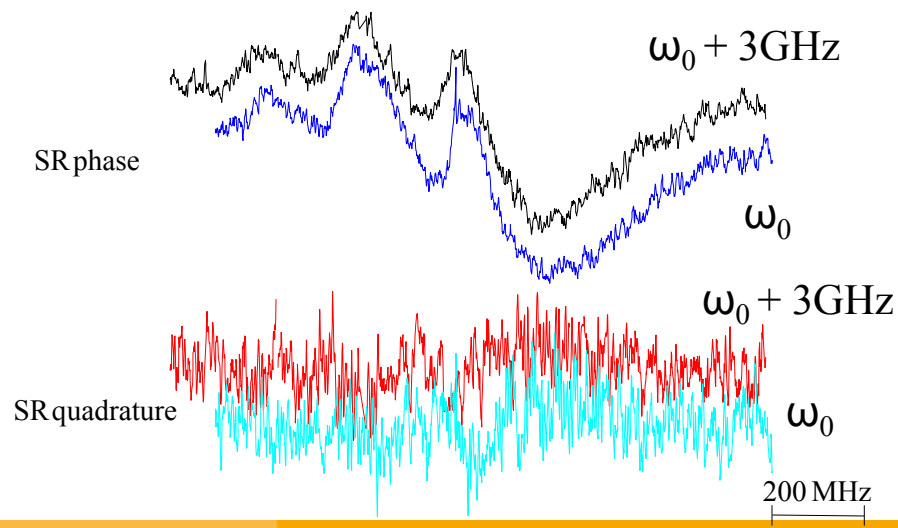
→ sélectivité spatiale (?)



Moindre compacité de la **première demi-couche**
 (quasi -équivalence avec une cellule mince ?)



Pompe-sonde avec une modulation **très** lente
une signature de "LIAD"
Light-Induced Atomic Desorption



The Intrinsic Structure of Spherical Particles of Opal

I. A. Karpov, É. N. Samarov, V. M. Masalov, S. I. Bozhko, and G. A. Emel'chenko

Institute of Solid State Physics, Russian Academy of Sciences, Chernogolovka, Moscow oblast, 142432 Russia
e-mail: emelch@issp.ac.ru

Received April 27, 2004

Abstract—The intrinsic structure of spherical SiO_2 particles synthesized by hydrolysis of tetrachyl orthosilicate in an alcohol–water–ammonia medium was studied using transmission electron microscopy. It was established that the relatively large spherical silica particles were “tertiary” structures made up of smaller spherical particles (“secondary” particles), which in turn consisted of even smaller primary spherical particles 5–10 nm in diameter. It was shown that, under the experimental conditions, the large SiO_2 particles can contain a central core comprising primary particles surrounded by several layers of secondary particles smaller than the core diameter. © 2005 Pleiades Publishing, Inc.

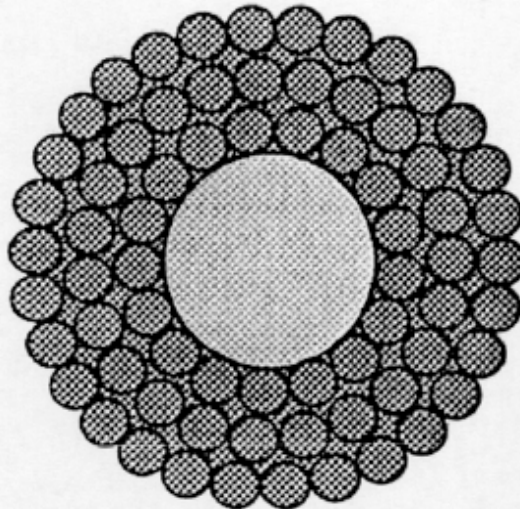


Fig. 5. Schematic structure of a large particle with a core. In the center, there is a large core composed of primary particles; the core is covered with several layers of secondary particles smaller than the core.

Structure **quasi-poreuse** des nanobilles

→ LIAD

Situation actuelle

Confinement sub- λ \rightarrow structure sub-Doppler rétrécissement Dicke (?)

$1\mu\text{m}$ \varnothing (10 or 20 couches) \rightarrow confinement dans un volume $10^{-1} \mu\text{m}^3$

et aussi : des démos avec des sphères \varnothing 400 nm

Linéarité en puissance (sub-Doppler qui ne vient pas d'un effet NL !)

\rightarrow spectro moléculaire, références de fréquences compactes, capteurs

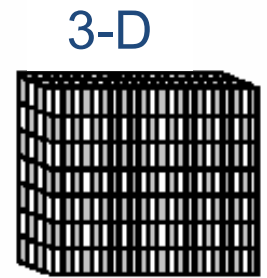
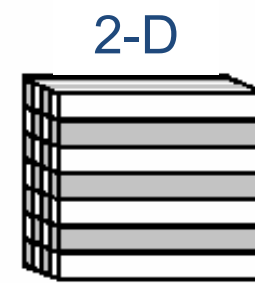
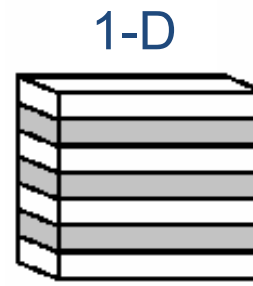
et aussi Light-Induced Atomic Desorption

En projet / en cours

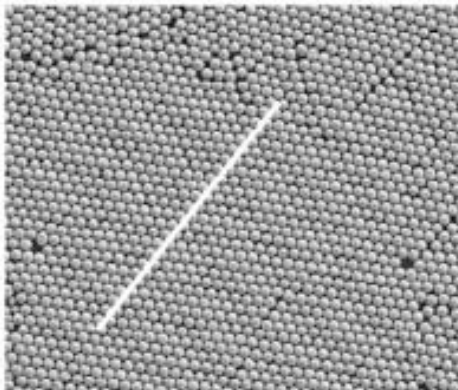
- Modèle de propagation dans l'opale (= cristal photonique) \rightarrow *incidence ?*
- Influence du **nombre de couches**
- Test du rétrécissement Dicke λ / interstice ...**455 nm/852 nm**
- Détection de la **diffusion** (insensibilité à l'incidence angulaire ?)

Stabilité des formes de raie, influence de la surface ...?

Cristal photonique

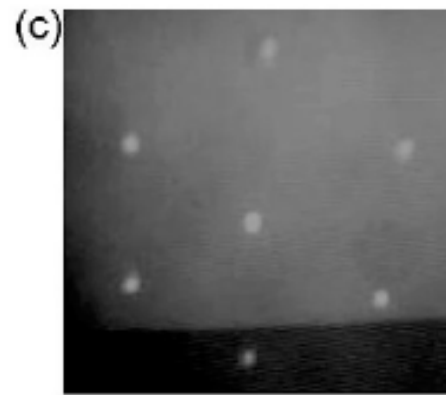


- la **bande photonique** peut modifier la structure atomique
- la vapeur sonde des régions avec **exaltation et/ou inhibition**
- Opales et cristaux réels : présence de **défauts**
- Opales : existence de "domaines" → **asymétrie dans la diffraction**

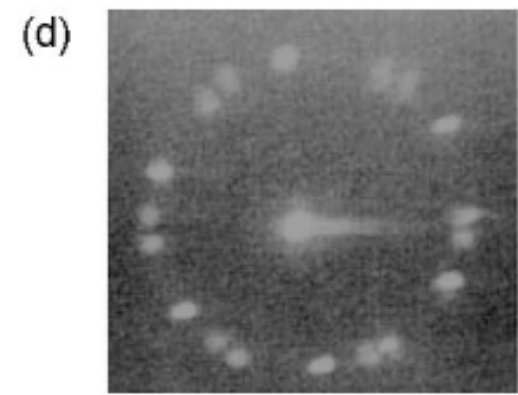


monocouche

(trait : 20 μm)



monodomaine



multi-domaine

LPL, *Ann. Phys. Fr.* **32**, 127 (2007)

Evaluation du PROJET par l'ANR

Points forts : Originalité du projet; n'est pas simplement l'extension naturel du travail 1D mené par le groupe ; Grande compétence et forte implication des membres permanents de l'équipe; - L'équipe a su établir des collaborations pour trouver les compétences qui lui faisaient défaut.

Points faibles : Pour réussir, ce projet doit surmonter deux difficultés: le confinement d'une vapeur atomique dans une structure micro ou nano métrique d'une part, la détection de très faible signaux d'autre part. **La réussite du projet a donc un certain coté aléatoire.** - Suggestion au porteur : Comme il a été indiqué, **la réussite du projet a un certain côté aléatoire. On se demande quel serait "le plan B"** dans le cas d'échec.

IMPACT

1 thèse soutenue (2012) *financement fléchage "thématiques prioritaires"*

1 article juste soumis à PRL

+ 1 article (proceedings / conf. invitée) incluant pompe/sonde

+ Conférences (invitées : 2, internationales : 6, nationales : 4)

+ 2 articles à rédiger (modélisation de l'optique dans les opales)

+ manips d'optique (non résonnante) à poursuivre

+ thèse en cours (E Moufarej), financement 18 mois ANR

+ LABEX SEAM (Science and Engineering for Advanced **Materials** and devices)

+ vulgarisation contribution Palais de la découverte/ "1 chercheur 1 manip"

ECOS-Sud Uruguay, pores cylindriques vs. grands pores+ A Laliotis invité, Opt Lett soumis

PICS Russie, et présence de I. Zabkov, doctorant, pour modélisation opales