



HAL
open science

Spectroscopie à haute résolution d'un gaz moléculaire confiné dans des cellules d'épaisseur micrométrique

Hippolyte Mouhanna, Natalia de Melo, Guadalupe Garcia Arellano, Joao Carlos de Aquino Carvalho, Frédéric Du-Burck, Benoit Darquie, Isabelle Maurin, Athanasios Laliotis

► **To cite this version:**

Hippolyte Mouhanna, Natalia de Melo, Guadalupe Garcia Arellano, Joao Carlos de Aquino Carvalho, Frédéric Du-Burck, et al.. Spectroscopie à haute résolution d'un gaz moléculaire confiné dans des cellules d'épaisseur micrométrique. Optique Normandie 2024, SFO (Société Française d'Optique), Jul 2024, Rouen, France. hal-04676853

HAL Id: hal-04676853

<https://hal.science/hal-04676853v1>

Submitted on 25 Aug 2024

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Spectroscopie à haute résolution d'un gaz moléculaire confiné dans des cellules d'épaisseur micrométrique

Hippolyte MOUHANNA¹, Natalia DE MELO¹, Guadalupe GARCIA ARELLANO¹, Joao Carlos DE AQUINO CARVALHO¹, Frédéric DU-BURCK¹, Benoit DARQUIE¹, Isabelle MAURIN¹, Athanasios LALIOTIS¹

¹ Laboratoire de Physique des Lasers, 93430 Villetaneuse, France
hippolyte.mouhanna@univ-paris13.fr

RESUME

La spectroscopie de molécules confinées dans des cellules micrométriques permet d'obtenir des spectres linéaires et sub-Doppler, bien décrits par notre modèle théorique. Ces signaux ont un intérêt pour enrichir les données des molécules d'intérêt atmosphériques, pour développer des références de fréquences compactes et pour des études fondamentales.

MOTS-CLEFS : *spectroscopie moléculaire linéaire, sub-Doppler, confinement micrométrique, gaz moléculaire*

1. INTRODUCTION

Les expériences avec des cellules minces d'épaisseur nanométrique ou micrométrique, remplies de vapeurs atomiques, se sont multipliées au cours des dernières décennies. Elles ont été utilisées pour étudier les effets spectroscopiques du confinement sub-longueur d'onde [1], pour mesurer l'interaction fondamentale Casimir-Polder entre l'atome et la surface [2] et, plus récemment, pour des applications de technologies quantiques (génération de photons uniques ou détections d'ondes térahertz). Transposer ces expériences dans le domaine de la physique moléculaire est une perspective intéressante, particulièrement prometteuse pour les mesures de précision des interactions molécule-surface. En outre, les molécules offrent des avantages spécifiques par rapport aux atomes, dans le domaine du référencement de fréquence, en fournissant un peigne de lignes rovibrationnelles dispersées dans tout le spectre infrarouge proche et moyen. Néanmoins, jusqu'à présent, seule une poignée d'expériences a permis de sonder des gaz moléculaires confinés dans des cellules gazeuses ultra-minces [3,4].

2. EXPERIENCES ET RESULTATS

Nous présentons ici nos expériences en cours sur les gaz moléculaires confinés dans des cellules minces d'une épaisseur inférieure à la longueur d'onde [3]. Nous présentons d'abord les expériences réalisées dans une cellule, composée de deux fenêtres de ZnSe séparées par un anneau d'or, d'épaisseur relativement uniforme de 5,35 μm . Nous réalisons une spectroscopie en transmission à haute résolution des molécules NH_3 et SF_6 avec une source laser à cascade quantique (QCL) émettant à une longueur d'onde (λ) de 10,55 μm (épaisseur de la cellule correspondant à $\lambda/2$) (Figure 1 a)). Dans cette même cellule, nous sondons également des molécules de C_2H_2 à 1,530 μm (Figure 1 c)). Pour ces expériences, nous avons développé des techniques permettant de réduire la dérive de fréquence des lasers et d'éliminer le bruit de fond [3]. Nos expériences démontrent le rétrécissement Dicke cohérent pour des rovibrations moléculaires et nous permettent d'effectuer une spectroscopie sub-Doppler avec une résolution limitée par l'élargissement par pression et par la largeur du laser pour de faibles pressions. Nous explorons également la spectroscopie du SF_6 dans une cellule mince dont l'épaisseur varie entre 600 et 1200 nm, dans le régime des sub-longueurs d'onde (Figure 1 b)). Nos spectres expérimentaux sont ajustés à un modèle théorique [5] qui tient compte des interactions

transitoires entre le laser et les molécules après une perte de cohérence due aux collisions avec les fenêtres de la cellule. Le modèle reproduit extrêmement bien les formes de raies observées pour toutes les molécules. Dans le cas des rovibrations de NH_3 et de C_2H_2 (dans la cellule $5,35\mu\text{m}$), les amplitudes absolues extraites de la spectroscopie en cellule mince correspondent très bien à celles rapportées dans la base de données HITRAN. Cela indique clairement que la distribution de la vitesse moléculaire et la fonction répartition de moléculaire sur différents états rotationnels sont bien décrites par les statistiques de type Maxwell-Boltzmann. Ce résultat n'est pas évident, car les collisions fréquentes entre les molécules et les surfaces peuvent influencer l'équilibre des gaz confinés [4]. Forts de ces conclusions, nous pouvons utiliser notre expérience pour obtenir des informations sur la molécule SF_6 pour laquelle la base de données HITRAN est notoirement incomplète et imprécise.

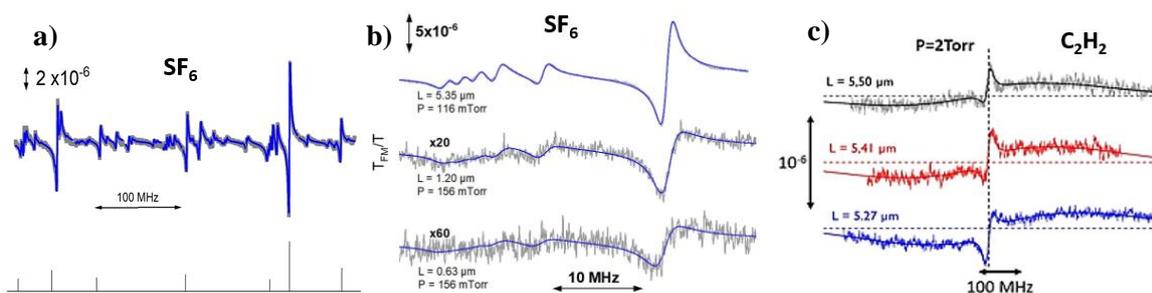


Figure 1 : a) : spectre de SF_6 dans une cellule de $5.35\mu\text{m}$ avec son fit et comparaison avec la base de données HITRAN. b) : Spectres de SF_6 avec leur fit à différentes épaisseurs (L) c) : spectres de C_2H_2 avec leur fit pour des faibles variations d'épaisseurs (épaisseurs avoisinant $7\lambda/2$)

CONCLUSION

La combinaison de la linéarité (avec la puissance optique) et de la haute résolution en fréquence de notre technique permet d'obtenir des informations sur les amplitudes et les positions des transitions moléculaires ainsi que leur élargissement et leur décalage collisionnel. La spectroscopie rovibrationnelle en cellule mince est une méthode alternative pour enrichir les bases de données moléculaires, en plus de l'absorption linéaire limitée par l'élargissement Doppler, ou de l'absorption saturée non linéaire. De plus, cette technique devrait nous permettre de développer une référence de fréquence compacte et d'effectuer des mesures de précision de l'interaction Casimir-Polder (molécule-surface).

RÉFÉRENCES

- ¹ G. Dutier, A. Yarovitski, S. Saltiel, A. Papoyan, D. Sarkisyan, D. Bloch and M. Ducloy, "Collapse and revival of a Dicke-type coherent narrowing in a sub-micron thick vapor cell transmission spectroscopy", *Europhys. Lett. EPL*, vol.63, pp. 35–41, 2003.
- ² M. Fichet, G. Dutier, A. Yarovitsky, P. Todorov, I. Hamdi, I. Maurin, S. Saltiel, D. Sarkisyan, M.-P. Gorza, D. Bloch and M. Ducloy, "Exploring the van der Waals atom-surface attraction in the nanometric range", *EPL*, vol.77, 54001, 2007.
- ³ G. Garcia Arellano, J.C. de Aquino Carvalho, H. Mouhanna, E. Butery, T Billeton, F Du-Burck, B Darquié, I. Maurin and A. Laliotis, "Probing molecules in gas cells of subwavelength thickness with high frequency resolution", *Nat Commun*, vol.15, 1862, 2024.
- ⁴ J.-M. Hartmann, X. Landsheere, C. Boulet, D. Sarkisyan, A. S. Sarkisyan, C. Leroy, and E. Pangui, "Infrared look at the spectral effects of submicron confinements of CO_2 gas" *Phys. Rev. A*, vol.93, 012516, 2016
- ⁵ Gabriel Dutier, Solomon Saltiel, Daniel Bloch, and Martial Ducloy, "Revisiting optical spectroscopy in a thin vapor cell: mixing of reflection and transmission as a Fabry–Perot microcavity effect", *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 20, pp.793-800, 2003