



**HAL**  
open science

# REFROIDISSEMENT MOLECULAIRE INDUIT PAR CHAMP ELECTRIQUE ; MISE EN EVIDENCE PAR SPECTROSCOPIE NON LINEAIRE CARS

Christophe Louot, Erwan Capitaine, Farid El Bassri, Dominique Pagnoux,  
Philippe Leproux, Hideaki Kano, Vincent Couderc

► **To cite this version:**

Christophe Louot, Erwan Capitaine, Farid El Bassri, Dominique Pagnoux, Philippe Leproux, et al..  
REFROIDISSEMENT MOLECULAIRE INDUIT PAR CHAMP ELECTRIQUE ; MISE EN EVIDENCE PAR SPECTROSCOPIE NON LINEAIRE CARS. COLOQ 2014, Jul 2015, Rennes, France.  
hal-01246603

**HAL Id: hal-01246603**

**<https://unilim.hal.science/hal-01246603>**

Submitted on 18 Dec 2015

**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.

# REFROIDISSEMENT MOLECULAIRE INDUIT PAR CHAMP ELECTRIQUE ; MISE EN EVIDENCE PAR SPECTROSCOPIE NON LINEAIRE CARS

Christophe Louot<sup>1</sup>, Erwan Capitaine<sup>1</sup>, Farid El. Bassri<sup>1</sup>, Dominique Pagnoux<sup>1</sup>, Philippe Leproux<sup>1</sup>, Hideaki Kano<sup>2</sup>, Vincent Couderc<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Laboratoire XLIM UMR CNRS 7252, Université de Limoges 123 Av. A. Thomas 87060 limoges, France

<sup>2</sup>Institute of Applied Physics, University of Tsukuba, 1-1-1 Tennodai, Tsukuba, Ibaraki, 305-8573, Japan  
[vincent.couderc@xlim.fr](mailto:vincent.couderc@xlim.fr)

## RÉSUMÉ

Nous avons montré qu'un refroidissement moléculaire pouvait être induit par un champ électrique statique appliqué à des molécules non polaires d'huile de paraffine. Cet effet a été mis en évidence grâce à une mesure de spectroscopie CARS (Coherente Anti-Stokes Raman Scattering). De manière complémentaire, l'exposition de molécules à un champ électrique permet de contrôler leur orientation et ainsi améliorer ou diminuer l'amplitude de leur signature vibrationnelle.

**MOTS-CLEFS :** *interaction lumière-matière, spectroscopie CARS, refroidissement moléculaire.*

## 1. INTRODUCTION

La spectroscopie CARS est une méthode d'identification moléculaire qui est basée sur l'excitation simultanée de liaisons atomiques grâce à un couple de faisceaux lasers (Pompe et Stokes). Leur écart fréquentiel est égal à la fréquence de vibration de la liaison que l'on souhaite exciter ce qui permet d'obtenir une réponse cohérente du matériau [1]. Si cette méthode de spectroscopie a été décrite très tôt en 1965 par P. D. Maker et al., il a fallu attendre les années 2000 pour voir émerger de nouvelles applications tournées vers l'imagerie cellulaire et le biomédical.

Afin de pouvoir stimuler et détecter simultanément plusieurs fréquences vibrationnelles, il est possible de remplacer l'onde monochromatique Stokes par un continuum de lumière possédant un grand nombre de longueurs d'onde, on parle alors de CARS Multiplex (M-CARS). Grâce à ce procédé, l'enregistrement d'un spectre unique peut donner des informations sur un grand nombre de liaisons et ainsi caractériser totalement un échantillon biologique.

Dans la littérature, de nombreux exemples de microscopes CARS Multiplex ont été rapportés. En 2003, Paulsen et al. ont mis au point un système de microscopie basé sur l'utilisation d'un laser à modes bloqués délivrant des impulsions de 50 fs de durée pour une fréquence de récurrence de 76 MHz ( $\lambda=795$  nm). Une fibre microstructurée permettait alors d'étendre le spectre grâce à un auto-décalage en fréquence de solitons [2]. Plus tard, en 2007, la première expérience de CARS multiplex utilisant un microlaser était publiée par Okuno et al. [3][4]. Ce dispositif, très compact, et beaucoup moins onéreux que les systèmes femtosecondes, a montré toute son efficacité dans la prise d'images de cellules tout en isolant une espèce chimique particulière. L'étroite largeur spectrale de l'impulsion laser de pompe permet d'obtenir une très forte résolution spectrale ( $< 1$  cm<sup>-1</sup>) tout en conservant une simultanéité forte entre toutes les composantes du spectre. L'inconvénient majeur de ce système CARS multiplex subnanoseconde réside dans le fait qu'une composante non linéaire, non issue des transitions vibrationnelles, se superpose au signal utile. On observe alors une déformation de celui-ci qu'il faut extraire grâce à une approche numérique ce qui limite la sensibilité du système global.

Dans le but de résoudre ce problème et de pouvoir contrôler l'orientation moléculaire nous avons rajouté, à cette microscopie CARS multiplex, une excitation électrique statique (puis pulsée). Nous avons alors démontré qu'il était possible de contrôler l'amplitude du signal en maîtrisant l'orientation des molécules. Cette manipulation est réalisée grâce au contrôle de l'orientation du champ électrique vis à vis du vecteur polarisation des ondes pompe et Stokes. La figure 1 montre un exemple d'évolution pour un échantillon d'huile de paraffine. Pour une tension de 1.7 kV une contribution maximale du signal CARS est obtenue. Au delà de cette tension, une contrainte électrostatique forte est exercée sur la molécule. On obtient alors une décroissance du signal CARS mais aussi un décalage de la raie ce qui est la signature d'une baisse de la température de la molécule sous test. Une troisième signature, liée à la diminution de la largeur de la raie CARS, est également observée ce qui nous conforte dans la mise en évidence d'un refroidissement moléculaire induit par effet électrique.

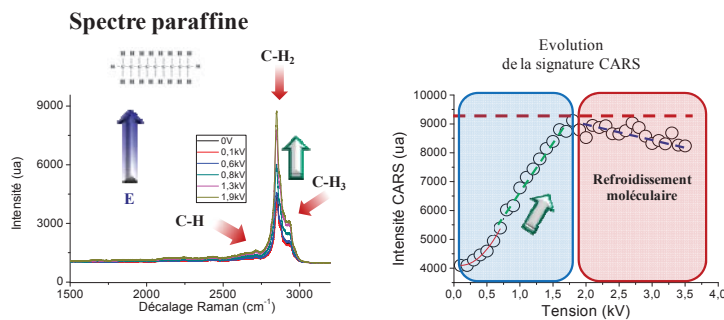


Fig. 1 : (Gauche) Evolution du profil du spectre CARS de l'huile de paraffine en fonction de la tension électrique appliquée. (Droite) Evolution de l'amplitude de la signature CARS en fonction de la tension de polarisation.

## CONCLUSION

Nous avons mis en évidence, grâce à un système de spectroscopie CARS multiplex, un refroidissement moléculaire induit par un champ électrique statique appliqué à de l'huile de paraffine. L'application du champ externe permet, dans un premier temps, de réaliser une orientation moléculaire améliorant l'amplitude de la signature CARS des liaisons C-H<sub>2</sub>. Pour des valeurs de champ plus fortes, une baisse de l'amplitude du signal, combinée à une modification du décalage Raman et une réduction de la largeur spectrale de la raie Anti-Stokes est obtenue. Toutes ces évolutions sont autant de preuves de la baisse locale de la température au sein de l'échantillon de paraffine.

## RÉFÉRENCES

- [1] P. D. Maker and R. W. Terhune, "Study of Optical Effects Due to an Induced Polarization Third Order in the Electric Field Strength," *Phys. Rev.* **137**, 801-818 (1965).
- [2] Henrik Nørgaard Paulsen, Karen Marie Hilligsøe, Jan Thøgersen, Søren Rud Keiding, and Jakob Juul Larsen, "Coherent anti-Stokes Raman scattering microscopy with a photonic crystal fiber based light source," *Opt. Lett.*, **28**, 1123-1126 (2003).
- [3] Masanari Okuno, Hideaki Kano, Philippe Leproux, Vincent Couderc, and Hiro-o Hamaguchi, "Ultrabroadband (>2000 cm<sup>-1</sup>) multiplex coherent anti-Stokes Raman scattering spectroscopy using a subnanosecond supercontinuum light source," *Opt. Lett.*, **32**, 3050-3052 (2007).
- [4] Masanari Okuno, Hideaki Kano, Philippe Leproux, Vincent Couderc, and Hiro-o Hamaguchi, "Ultrabroadband multiplex CARS microspectroscopy and imaging using a subnanosecond supercontinuum light source in the deep near infrared," *Opt. Lett.*, **33**, 923-926 (2008).